

Wachstum und Charakterisierung von ein- und zweidimensional gitterangepasstem AlInN auf GaN verschiedener Orientierungen für verspannungsfreie und metamorphe Puffer-Schichten

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

von Ernst Ronald Korn, geb. Buß
aus Frankenberg (Eder)

eingereicht am: 21.03.2016

mündliche Prüfung (Disputation) am: 22.07.2016

1. Referent: Prof. Dr. Andreas Hangleiter

2. Referent: Prof. Dr. Ferdinand Scholz

Druckjahr: 2016

Vorveröffentlichungen der Dissertation

Teilergebnisse aus dieser Arbeit wurden mit Genehmigung der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik, vertreten durch die Mentorin oder den Mentor / die Betreuerin oder den Betreuer der Arbeit, in folgenden Beiträgen vorab veröffentlicht:

Publikationen:

- A. Kraus, S. Hammadi, J. Hisek, E. R. Buß, H. Jönen, H. Bremers, U. Rossow, E. Sakalauskas, R. Goldhahn und A. Hangleiter, *Growth and characterization of InGaN by RF-MBE*, J. Cryst. Growth **323**, 72 (2011).
- U. Rossow, A. Kruse, H. Jönen, L. Hoffmann, F. Ketzer, T. Langer, E. R. Buß, H. Bremers, A. Hangleiter, T. Mehrstens, M. Schowalter und A. Rosenauer, *Optimizing the growth process of the active zone in GaN based laser structures for the long wavelength region*, J. Cryst. Growth **370**, 105 (2013).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Lattice-matched AlInN in the initial stage of growth*, Appl. Phys. Lett. **104**, 162104 (2014).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, M. Caliebe, F. Scholz und A. Hangleiter, *Intentional anisotropic strain relaxation in (11 $\bar{2}$ 2) oriented Al_{1-x}In_xN one-dimensionally lattice matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. **105**, 122109 (2014).
- U. Rossow, L. Hoffmann, H. Bremers, E. R. Buß, F. Ketzer, T. Langer, A. Hangleiter, T. Mehrstens, M. Schowalter und A. Rosenauer, *Indium incorporation processes investigated by pulsed and continuous growth of ultrathin InGaN quantum wells*, J. Cryst. Growth **414**, 49 (2015).
- E. R. Buß, P. Horenburg, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, M. Caliebe, F. Scholz und A. Hangleiter, *Non- and semipolar AlInN one-dimensionally lattice-matched to GaN for realization of relaxed buffer layers for strain engineering in optically active GaN-based devices*, Phys. Status Solidi B **253**, 84 (2016).
- P. Horenburg, E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, F. A. Ketzer und A. Hangleiter, *Strain dependence of In incorporation in m-oriented GaInN/GaN multi quantum well structures*, Appl. Phys. Lett. **108**, 102105 (2016).

Tagungsbeiträge:

- E. R. Buß, A. Kraus, H. Bremers, P. Clodius, H. Jönen, U. Rossow und A. Hangleiter, *Characterization of surfaces of heteroepitaxially grown group-III-nitride layers* (Vortrag), DME Usermeeting, Burg Staufenberg (2010).
- E. R. Buß, H. Bremers, D. Dräger, U. Rossow, E. Sakalauskas, R. Goldhahn und A. Hangleiter, *Wachstum und Charakterisierung von AlInN-Mantelschichten für Laserstrukturen* (Vortrag), 25. DGKK-Workshop, Aachen (2010).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, D. Dräger, E. Sakalauskas, R. Goldhahn und A. Hangleiter, *Growth and characterization of AlInN for cladding layers in long wavelength GaN based laser structures* (Vortrag), DPG Frühjahrstagung, Dresden (2011).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Growth and characterization of AlInN for cladding layers in GaN based laser structures* (Poster), EWMOVPE, Wroclaw (2011).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Epitaxy and characterization of $Al_{1-x}In_xN$ on various substrates* (Vortrag), 26. DGKK-Workshop, Stuttgart (2011).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Surface morphology of $Al_{1-x}In_xN$ grown by low pressure MOVPE on various templates* (Poster), ISGN, St. Petersburg (2012).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, F. Scholz und A. Hangleiter, *Epitaxy of $Al_{1-x}In_xN$ on differently oriented GaN surfaces* (Vortrag), 27. DGKK-Workshop, Erlangen (2012).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Epitaxy and characterization of $Al_{1-x}In_xN$ grown by low pressure MOVPE on various substrates* (Vortrag), DPG Frühjahrstagung, Berlin (2012).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, F. Scholz und A. Hangleiter, *Growth and characterization of AlInN on different non- and semipolar GaN surface orientations* (Poster), EWMOVPE, Aachen (2013).
- E. R. Buß, H. Bremers, U. Rossow, T. Meisch, F. Scholz und A. Hangleiter, *Epitaxy of $Al_{1-x}In_xN$ on different GaN-surface orientations* (Vortrag), DPG Frühjahrstagung, Regensburg (2013).
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, F. Scholz und A. Hangleiter, *$Al_{1-x}In_xN$ on non- and semipolar GaN* (Poster), ICNS, Washington (2013).

-
- E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Investigations of the indium incorporation in AlInN in the initial stage of growth* (Vortrag), 28. DGKK-Workshop, Ilmenau (2013).
 - E. R. Buß, H. Bremers, U. Rossow, T. Meisch, F. Scholz und A. Hangleiter, *Growth and characterization of non- and semipolar AlInN and possibilities for relaxed buffer layer engineering* (Vortrag), DPG Frühjahrstagung, Dresden (2014).
 - E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers und A. Hangleiter, *Investigation of the indium incorporation into AlInN in the initial stage of growth* (Vortrag), ICMOVPE, Lausanne (2014).
 - E. R. Buß, H. Bremers, U. Rossow, T. Meisch, M. Caliebe, F. Scholz und A. Hangleiter, *Relaxation of non- and semipolar AlInN one-dimensionally lattice matched to GaN* (Vortrag), IWN, Wrocław (2014).

Inhaltsverzeichnis

Summary	1
Zusammenfassung	5
1 Einleitung	9
2 Die Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride	13
2.1 Strukturelle Eigenschaften	13
2.1.1 Kristallstruktur	13
2.1.2 Die verschiedenen Kristallflächen	16
2.2 Die Elastizitätstheorie	17
2.2.1 Das Hookesche Gesetz	18
2.2.2 Kritische Schichtdicke und Defekte	22
2.3 Bandlücke und elektronische Eigenschaften	26
2.3.1 Die Bandlücke der Gruppe-III-Nitride	26
2.3.2 Heterostrukturen	28
2.3.3 Piezoelektrische Polarisierung	29
2.3.4 Quantum Confined Stark Effect	31
3 Experimentelle Methoden	33
3.1 Epitaxie	33
3.2 Strukturelle Charakterisierung	38
3.2.1 Hochauflösende Röntgenbeugung	38
3.2.2 Rastersondenmikroskopie	42
3.2.3 Elektronenmikroskopie	44
4 Polares AlInN auf c-orientiertem GaN	45
4.1 Wachstum von gitterangepasstem AlInN auf GaN-Pufferschichten	47
4.1.1 Einfluss der Wachstumstemperatur auf die Zusammensetzung des AlInN	48
4.1.2 Die Wasserstoff-Indium-Antikorrelation	52
4.1.3 Der Brechungsindex gitterangepasster Schichten	55

4.1.4	Die Oberfläche und Komposition dicker c-planarer Schichten . . .	57
4.2	Wachstum von c-gitterangepasstem AlInN auf {1101}-Facetten	60
4.3	Wachstum von gitterangepasstem AlInN auf freistehenden GaN-Substraten	63
4.3.1	Die Oberfläche gitterangepasster Schichten auf GaN-Pseudosubstraten	64
4.3.2	Die Kompositionsaufspaltung gitterangepasster Schichten auf GaN-Pseudosubstraten	66
4.4	Der Indiumgehalt nominell gitterangepasster Schichten zu Beginn des Wachstums	67
4.5	Abscheidung dicker AlInN-Schichten mit GaN-Planarisierungsschichten . .	82
5	Nicht- und semi-polares AlInN auf unterschiedlichen GaN-Substraten	87
5.1	Wachstum von (112)-orientiertem AlInN	89
5.1.1	Der Indiumeinbau für (112)-orientiertes AlInN	91
5.1.2	Die Oberflächenmorphologie und Wachstumsraten eindimensional gitterangepasster Schichten	92
5.1.3	Das Relaxationsverhalten eindimensional gitterangepasster AlInN-Schichten	96
5.2	Wachstum von m-planarem AlInN	110
5.2.1	Die Abscheidung von m-planarem AlInN	112
5.2.2	Der Indiumeinbau für m-orientiertes AlInN	114
5.2.3	Die Autoinkorporation von Gallium in AlInN	115
5.2.4	Die Oberflächenmorphologie m-orientierter AlInN-Schichten . . .	119
5.2.5	Röntgenstrukturanalyse unterschiedlich eindimensional gitterangepasster Schichten	122
5.2.6	Realisierung kontrolliert relaxierter eindimensional gitterangepasster Pufferschichten	126
6	Ausblick	129
	Literaturverzeichnis	131

Summary

The main topic of this work have been the deposition and characterization of the ternary compound semiconductor AlInN for one- and two-dimensionally lattice matched layers for several purposes in GaN-based optically active semiconductor heterostructures. The AlInN layers have been deposited via metalorganic vapor phase epitaxy on polar *c*-oriented, semi-polar ($11\bar{2}2$)-oriented, and nonpolar *m*-oriented planes of GaN.

The first part of this work deals with polar, nominally *a*-lattice matched AlInN-layers on *c*-oriented GaN templates. First of all, the influence of several growth parameters on the growth and composition of the AlInN have been investigated. It became apparent, that the indium content x of the $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ layers is mainly set by the growth temperature. The indium incorporation efficiency is in a temperature regime from 800 °C till 950 °C highly linear. The resulting indium content of the layers decreases by $0.2\% \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ with increasing temperature. The lattice matching condition of the $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ with an indium content of $x = 18\%$ is found to be at a growth temperature of 850 °C under standard growth conditions. Via rocking curve measurements on the (0002)-reflex, it could be shown, that the quality of the deposited AlInN-layers is extremely high. The values of 0.07° for the full width at half maximum of the corresponding diffraction peaks is extremely low and similar to the ones for the GaN templates. A strong hydrogen-indium-anticorrelation could be found. Molecular hydrogen present in the reactor during the growth of AlInN does strongly affect the resulting indium content of the AlInN-layers. Therefore, the additional hydrogen amount used as carrier gas has to be kept as low as possible during growth. Finally, an increased contrast of the refraction indices of lattice matched $\text{Al}_{0.82}\text{In}_{0.18}\text{N}$ and GaN compared to $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ with an aluminum content of 10 % and GaN could be shown by measurements via spectroscopic ellipsometry.

However, several problems arise during deposition of lattice matched AlInN-layers. Nominally lattice matched layers are roughening with increasing layer thickness. While layers with a layer thickness of 6.0nm exhibit a RMS-roughness of not more than 0.3 nm, layers with nominal thicknesses of about 200 nm show values of RMS-roughness of 9.8 nm, and more. For nominally lattice matched AlInN layers with thicknesses above 200 nm an additional splitting of the composition is observable. This splitting of the composition is expressed in a parasitic composition of round about 5 % less indium besides the targeted composition of 18 %. In experiments with nominally lattice matched AlInN layers on intentionally

pitted GaN-templates with a high density of deep V-pits exhibit, that the AlInN grown on the semipolar $\{1\bar{1}01\}$ -facets of the V-pits rather show an increased indium incorporation efficiency than a lowered one. Due to this, the reason of the splitting of the indium content cannot only be reasoned by the formation of the V-pits during AlInN growth. The roughening with increasing layer thickness as well as the composition splitting for very thick layers can also be found on free-standing GaN pseudo-substrates. For that reason, the density of threading dislocations coming from the template also cannot be the only trigger for these two problems.

Finally, a model for explanation of the emerging problems could be derived from experiments with tenfold AlInN/GaN-superlattice structures. It was found, that the indium content of the AlInN layers strongly depends on the layer thickness, although these samples are all grown under exactly the same growth conditions. Under same conditions, the indium content increases from 3.0% for layer thicknesses of 0.5 nm to 16.5% for layer thicknesses of 5.0 nm. This behavior couldn't be influenced, neither by the variation of the lattice mismatch between the AlInN and different templates, nor by the indium content of the gas phase. Due to the fact, that the GaN interlayers have been grown at the same growth temperature the desorption of indium could also be ruled out as the reason for the lowered indium content of thin AlInN-layers. From these data, physical models based on a delayed indium incorporation have been developed to explain this behavior. Both models are capable of describing the behavior almost exactly. Assuming a step function the result is the growth of a pure AlN layer with a layer thickness of 0.4 nm in the beginning of every single AlInN-layer. Naturally, the indium content will not follow a step function, but this clearly gives a hint on the missing amount of indium. Missing indium inside the AlInN-layers will lead to a strong lattice mismatch between the AlInN and the underlying GaN. This lattice mismatch will lead to strong instabilities in indium incorporation by implication, which will lead to further problems during the growth of the AlInN-layers. With this, the emerging problems as the roughening of the layers, or the composition splitting can be explained.

Despite the existing problems during deposition of thick AlInN-layers, a lattice matched AlInN-layer with a total thickness of more than 200 nm has been grown with high quality. A structure made of a fourfold superlattice of single AlInN-layers with thicknesses of about 60 nm and thin GaN-interlayers for planarization achieves a total thickness of the AlInN of about 240 nm. For this structure, the before mentioned issues as the extreme roughening and composition splitting cannot be observed. The surface of the last GaN-layer is extremely smooth and exhibits a RMS-roughness of not more than 0.3 nm. Due to the fact, that the thickness of every single AlInN-layer stays below the critical thickness for composition splitting of about 200 nm, the composition splitting can be prevented in this structure.

The second part of this work has its focus on the growth and characterization of non- and semipolar AlInN on several GaN-substrates and templates. In contrast to the polar structures, non- and semipolar AlInN cannot be grown two-dimensionally lattice matched to GaN. The direction of lattice-matching is set by the composition.

Irrespective of the orientation of the substrate or the lattice mismatch between the AlInN-layer and the substrate, the nonpolar *m*-oriented and semipolar $(11\bar{2}2)$ -oriented AlInN-layers reveal the same indium incorporation efficiency as the polar layers do. Measurements via energy dispersive X-ray spectroscopy revealed, that there is no parasitic gallium incorporation into the AlInN-layers as reported in the literature. Therefore, it can be assumed, that all evaluations of the compositions of the samples are correct, and there is no need of assuming a quaternary AlGaInN material. The origin of the parasitic gallium is accounted for by the design of the growth chamber of the other research groups reporting the parasitic gallium. Parasitic gallium inside the AlInN-layers is only reported from groups using so called “showerhead reactors“. For horizontal reactors - as it is used for this work - this effect cannot be observed.

The surface of the non- and semipolar layers are typically characterized by a striated morphology. Such a strong roughening with increasing layer thickness, as it is observed for polar structures, does not appear for these samples. A composition splitting for layers exceeding layer thicknesses of about 200 nm is not observable as well.

For *m*-oriented, as well as for $(11\bar{2}2)$ -oriented AlInN-layers it could be shown, that it is possible to realize controlled relaxation in different in-plane directions by setting the direction of lattice matching. The degree of relaxation of the topmost parts of the AlInN-layers can be set by the layer thickness. Lattice matching in *c*-direction of *m*-oriented AlInN-layers, and lattice matching in $[11\bar{2}3]$ of $(11\bar{2}2)$ -oriented layers lead to a relaxation of the non-lattice-matched direction towards larger lattice constants. Lowered degrees of relaxation of samples grown on free-standing *m*-oriented GaN pseudo-substrates imply that threading dislocations coming from the template or substrate play a key role in the relaxation mechanisms of nonpolar AlInN-layers. Through controlled relaxation of the layers, larger in-plane lattice parameters of the AlInN can be achieved for later growth of GaInN/GaN-quantum well structures. With this controlled relaxation towards larger lattice constants of the AlInN, a specific manipulation of the anisotropic in-plane strain of the GaInN/GaN-quantum well structures and higher indium concentrations of the GaInN-layers without exceeding the critical thickness for relaxation and dislocation generation are getting within reach.

Zusammenfassung

Das zentrale Thema dieser Arbeit bilden die Herstellung und Charakterisierung des ternären Verbindungshalbleiters AlInN für ein- und zweidimensional gitterangepasste Schichten mit unterschiedlichen Aufgaben in GaN-basierten und optisch aktiven Halbleiterheterostrukturen. Die mittels metallorganischer Gasphasenepitaxie abgeschiedenen Schichten wurden sowohl auf der polaren c -Fläche als auch auf den nicht- und semipolaren m - bzw. $(11\bar{2}2)$ -Flächen der Wurtzit-Struktur realisiert.

Im ersten Teil dieser Arbeit werden die Ergebnisse polarer c -orientierter AlInN-Schichten mit nomineller Gitteranpassung an die a -Gitterkonstante von GaN vorgestellt. Zunächst wurde untersucht, welchen Einfluss unterschiedliche Wachstumsparameter auf das Wachstum und die Zusammensetzung des abgeschiedenen AlInN zeigen. Hierbei zeigte sich, dass der Indiumgehalt x des $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ hauptsächlich von der Wachstumstemperatur bestimmt wird. Der Indiumeinbau erweist sich über einen weiten Temperaturbereich von 800 °C bis 950 °C als äußerst linear. Der resultierende Indiumgehalt der Schichten sinkt mit jedem Grad während des Wachstums um rund 0,2 %. Eine Gitteranpassung an GaN bei einem Indiumgehalt von rund 18 % wird unter Standardwachstumsbedingungen bei einer Temperatur von 850 °C erreicht. Mittels sogenannter „rocking curve“-Messungen am (0002)-Reflex des AlInN konnte gezeigt werden, dass die Qualität der abgeschiedenen Schichten mit Werten für die Halbwertsbreite von rund 0,07° äußerst hoch ist. Bei Experimenten mit unterschiedlichen Wasserstoff-Trägergasflüssen zeigte sich eine starke Wasserstoff-Indium-Antikorrelation. Während des Wachstums anwesender molekularer Wasserstoff im Reaktor verringert die Einbaueffizienz von Indium signifikant. Messungen mittels spektroskopischer Ellipsometrie bewiesen einen verbesserten Kontrast der Brechungsindizes von gitterangepasstem AlInN und GaN gegenüber AlGaIn mit einem Aluminiumgehalt von rund 10 %.

Es ergaben sich bei der Abscheidung gitterangepasster Schichten aber auch einige Probleme. So rauen nominell gitterangepasste Schichten mit zunehmender Schichtdicke extrem auf. Während rund 6,0 nm dicke c -orientierte Schichten eine RMS-Rauheit von gerade einmal 0,3 nm aufweisen, zeigen nominell 200 nm dicke Schichten eine RMS-Rauheit von 9,8 nm. Für Schichten mit Dicken oberhalb von 200 nm ist zusätzlich zu der Aufrauung der Oberfläche eine Aufspaltung der Zusammensetzung zu beobachten. Hierbei tritt neben der gewollten Zusammensetzung eine parasitäre Komposition des AlInN mit einem um

rund fünf Prozent verringerten Indiumgehalt auf. In Experimenten auf GaN-Pufferschichten mit absichtlich herbeigeführten tiefen V-förmigen Löchern zeigte sich, dass AlInN auf den semipolaren $\{1\bar{1}01\}$ -orientierten Seitenfacetten der V-förmigen Löcher höchstens eine gesteigerte, aber keinesfalls eine verringerte Effizienz des Indiumeinbaus besitzt. Die Aufspaltung der Komposition dicker AlInN-Schichten kann somit nicht allein auf die Ausbildung von V-förmigen Löchern im AlInN zurückzuführen sein. Auch auf freistehenden GaN-Pseudosubstraten lassen sich sowohl die Aufrauung der Oberfläche als auch die damit einhergehende Aufspaltung der Zusammensetzung nicht unterdrücken. Die Dichte der Durchstoßversetzungen ist somit als alleiniger Grund für diese beiden Probleme bei der Abscheidung dicker nominell gitterangepasster Schichten auszuschließen.

Aus Experimenten mit zehnfach AlInN/GaN-Übergitterstrukturen konnte letztendlich ein Modell zur Erklärung der auftretenden Probleme abgeleitet werden. Es zeigte sich unter exakt identischen Wachstumsbedingungen ein Ansteigen des Indiumgehalts dünner AlInN-Schichten innerhalb der ersten wenigen Nanometer. So steigt unter gleichen Bedingungen der Indiumgehalt im AlInN von rund 3,0 % für eine Schichtdicke von 0,5 nm auf 16,5 % für eine Schichtdicke von 5,0 nm an. Dieses Verhalten ließ sich weder durch eine Variation der Gitterfehlانpassung durch die Wahl unterschiedlicher Pufferschichten, noch durch den Indiumgehalt der Gasphase beeinflussen. Ebenfalls kann die Desorption von Indium aus den AlInN-Schichten als Ursache hierfür ausgeschlossen werden, da die GaN-Zwischenschichten bei der gleichen Wachstumstemperatur wie die AlInN-Schichten abgeschieden wurden. Auf Basis dieser Daten wurden physikalische Modelle zur Erklärung entwickelt, welche auf einem verzögerten Indiumeinbau zu Beginn der Abscheidung beruhen. Beide Modelle beschreiben den Sachverhalt sehr genau. Unter Annahme einer Stufenfunktion ergibt sich, dass zu Beginn einer jeden AlInN-Schicht rund 0,4 nm reines AlN abgeschieden werden. Die so entstehenden Verspannungen innerhalb der Schicht führen wiederum zu Instabilitäten im Indiumeinbau, welche später im Verlauf der Abscheidung zu weiteren Problemen führen und so die auftretenden Phänomene wie die Aufrauung und Aufspaltung der Zusammensetzung erklären können.

Trotz der auftretenden Probleme bei der Abscheidung dicker AlInN-Schichten ist es dennoch gelungen gitterangepasstes AlInN mit Gesamtschichtdicken von 200 nm und mehr mit einer hohen Qualität abzuschcheiden. Eine Vierfach-Stapelfolge aus einzelnen AlInN-Schichten mit Schichtdicken von rund 60 nm und dünnen GaN-Zwischenschichten zur Planarisierung erreicht eine Gesamtschichtdicke des AlInN von 240 nm. Hierbei treten die zuvor erläuterten Phänomene dicker Schichten nicht auf. Die Oberfläche der letzten GaN-Schicht dieser Probe ist extrem glatt und hat eine Oberflächenrauheit von gerade einmal 0,3 nm. Auch die Kompositionsaufspaltung kann auf diesem Wege vermieden werden, da die einzelnen AlInN-Schichten unterhalb der kritischen Schichtdicke für die Aufspaltung von rund 200 nm bleiben.

Im zweiten Teil dieser Arbeit werden die Ergebnisse des Wachstums und der Charakterisierung von nicht- und semipolarem AlInN auf unterschiedlichen GaN-Substraten und -Unterbauten vorgestellt. Im Unterschied zu polaren Strukturen kann nicht- und semipolares AlInN nicht gleichzeitig in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsebene gitterangepasst abgeschieden werden. Die Richtung der Anpassung kann über den Indiumgehalt der Schichten gesteuert werden.

Unabhängig von der Orientierung und der Gitterfehlanpassung zwischen dem AlInN und der darunterliegenden GaN-Schicht in unterschiedliche Richtungen zeigt sich sowohl für die nichtpolaren m-orientierten als auch die semipolaren $(11\bar{2}2)$ -orientierten AlInN-Schichten das gleiche Einbauverhalten von Indium in den Kristall wie für die polaren Strukturen. Anhand von Messungen mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie konnte nachgewiesen werden, dass in die AlInN-Schichten kein parasitäres Gallium eingebaut wird, wie dies von einigen Stimmen in der Literatur berichtet wird. Es kann also davon ausgegangen werden, dass alle Auswertungen die Komposition und den Verspannungszustand betreffend in dieser Hinsicht korrekt sind und nicht von einem quaternären Materialsystem ausgegangen werden muss. Die Ursache des parasitären Galliumeinbaus liegt im Design der Reaktoren anderer Forschungsgruppen begründet und tritt offenbar nur bei sogenannten *showerhead*-Reaktoren auf. Für Horizontalreaktoren - wie er im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurde - ist dieser Effekt nicht nachzuweisen.

Die Oberflächen der nicht- und semipolaren Schichten sind meist durch eine streifenartige Morphologie geprägt. Eine so starke Aufrauung mit zunehmender Schichtdicke, wie sie für die polaren Schichten zu beobachten ist, tritt bei diesen Proben nicht zu Tage. Ebenso ist keine Aufspaltung der Komposition beim Überschreiten von Schichtdicken im Bereich von 200 nm bis 250 nm zu beobachten.

Sowohl für die m- als auch die $(11\bar{2}2)$ -orientierten AlInN-Schichten konnte gezeigt werden, dass es möglich ist, die Schichten durch Anpassung der Gitterkonstante in eine Richtung in die dazu senkrecht stehende und nicht gitterangepasste Richtung in der Wachstumsebene relaxieren zu lassen. Über die Schichtdicke kann der Relaxationsgrad der obersten Teile der AlInN-Schicht gezielt beeinflusst werden. Eine Gitteranpassung in c-Richtung von m-planarem AlInN bzw. eine Gitteranpassung in Richtung $[11\bar{2}3]$ von $(11\bar{2}2)$ -orientiertem Material führen somit zu einer Relaxation hin zu größeren Atomabständen des AlInN in a- bzw. m-Richtung. Die sehr viel geringeren Relaxationsgrade der Proben auf freistehenden m-planaren GaN-Pseudosubstraten lassen darauf schließen, dass bei der Relaxation dieser Schichten bestehende Versetzungen aus dem Unterbau eine zentrale Rolle spielen. Auf Basis dieser gezielten Relaxation können größere Gitterkonstanten in der Wachstumsebene für das spätere Wachstum von GaInN/GaN-Quantentopfstrukturen realisiert werden. Eine gezielte Beeinflussung der anisotropen Verspannung der GaInN/GaN-Quantentopfstrukturen

und die Ermöglichung höherer Indiumgehalte im GaInN ohne Überschreiten der kritischen Schichtdicke rückt somit in greifbare Nähe.

1 Einleitung

Nachdem Maruska und Tietjen mit Hilfe der Hydridgasphasenepitaxie im Jahr 1969 die ersten Schichten aus Galliumnitrid (GaN) auf Saphir-Substraten realisierten [1], nahm die Entwicklung von GaN-basierten Halbleiterbauelementen eine rasante Entwicklung. Amano *et al.* realisierten dann im Jahr 1986 erste hochqualitative GaN-Schichten mittels der Methode der metallorganischen Gasphasenepitaxie durch Einführung einer Tieftemperaturschicht aus Aluminiumnitrid (AlN) [2]. Wenig später gelang es Nakamura im Jahre 1991 mit Hilfe einer Tieftemperatur-GaN-Schicht ebenfalls exzellente GaN-Schichten auf Saphir-Substraten abzuschneiden [3]. Durch die Realisierung der ersten p-Dotierung von GaN mit Hilfe von Magnesium durch Amano *et al.* im Jahr 1989 wurde der Grundstein für GaN-basierte lichtemittierende Dioden gelegt [4]. Nahezu parallel dazu entwickelten Nakamura *et al.* im Jahr 1992 ein Ausheizverfahren zur Realisierung der p-Dotierung [5]. Letztendlich konnten Nakamura *et al.* eine Passivierung der Magnesium-Dotierung durch Wasserstoffatome als den verantwortlichen Mechanismus hinter der mangelnden p-Dotierung ausmachen. 1993 demonstrierte Nakamura die erste auf Galliumindiumnitrid (GaInN) basierende lichtemittierende Diode auf Basis einer GaN/GaInN/GaN-Doppelheterostruktur [6]. Für diese frühen Arbeiten erhielten Isamu Akasaki, Hiroshi Amano und Shuji Nakamura im Jahr 2014 den Nobelpreis für Physik.

Auf dieser Grundlage aufbauend wurde im Laufe der folgenden Jahre eine Vielzahl von GaN-basierten Bauelementen wie Laser, lichtemittierende Dioden und Transistoren entwickelt. Hierbei ist das ternäre Materialsystem Aluminiumgalliumnitrid (AlGaIn) das am häufigsten verwendete Material für *Confinement*-Schichten in GaN-basierten Lasern [7] oder sogenannten *Distributed Bragg Reflectors* (DBR) [8–12]. Sowohl für die DBRs als auch für die *Confinement*-Schichten werden größtmögliche Kontraste im Brechungsindex zwischen GaN und der jeweiligen Schicht benötigt. Da für AlGaIn die Gitterfehlpassung bis zu 2,5 % betragen kann, und der Kontrast im Brechungsindex direkt proportional mit dem Aluminiumgehalt skaliert, sind die beiden Wünsche eines höchstmöglichen Kontrasts im Brechungsindex bei zugleich kleinstmöglicher Gitterfehlpassung grundsätzlich gegensätzlich [13].

Eine weitere Eigenschaft der Gruppe-III-Nitride in der Wurtzit-Struktur sind die auftretenden großen spontanen und piezoelektrischen Felder. Während diese bei *High Electron*

Mobility Transistoren (HEMT) benötigt werden, führen sie in der aktiven Zone von GaInN-basierten lichtemittierenden Dioden zu großen Problemen. Die aus der Verspannung der aktiven Zone resultierenden piezoelektrischen Felder trennen die Elektronen und Löcher räumlich voneinander und führen so zu einer verringerten Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombinationsprozesse [14]. Zusätzlich tritt durch die Beeinflussung der Bandstruktur eine Rotverschiebung des emittierten Lichts auf. Beide Effekte, die Verringerung der Rekombinationswahrscheinlichkeit bei gleichzeitig verringerter Bandlücke, werden unter dem Begriff des *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) zusammengefasst [15]. Durch den QCSE ergeben sich für diese Bauelemente beispielsweise erhöhte Schwellen für den Betrieb von Lasern oder vergrößerte Wellenlängen des emittierten Lichts für lichtemittierende Dioden. Des Weiteren können die großen auftretenden Verspannungen bei der Heteroepitaxie unterschiedlicher Gruppe-III-Nitride zur Generierung von Kristalldefekten führen, welche wiederum als nichtstrahlende Rekombinationszentren in der optisch aktiven Zone wirken können [16].

Hier stellt sich Aluminiumindiumnitrid (AlInN) als ein sehr vielversprechender Kandidat dar, um das AlGaIn in einer Vielzahl von Anwendungen zu ersetzen. Zusätzlich zu der Tatsache, dass AlInN nach der Regel von Vegard [17] mit einem Indiumgehalt von rund 18 % gitterangepasst an GaN abgeschieden werden kann [18, 19] und so die starken defektgenerierenden Verspannungen vermieden werden können, bietet es im Vergleich zu AlGaIn mit einem Aluminiumgehalt von rund 10 % zusätzlich einen höheren Kontrast im Brechungsindex zu GaN [13]. Dadurch können erhöhte Kontraste im Brechungsindex bei gleichzeitiger Verringerung der Verspannungsenergie in den Bauelementen erreicht werden. Auch für HEMT-Strukturen wurde AlInN im Jahr 2001 erstmals von Kuzmik vorgeschlagen [20]. Bereits in den Jahren 2004 und 2005 wurden die ersten hochstromfähigen Feldeffekttransistoren [21] und DBRs [18] auf Basis von gitterangepasstem AlInN realisiert.

Neben all den Vorteilen, welche AlInN bietet, existieren auch einige Nachteile, welche die Nutzbarkeit von AlInN einschränken. Unter allen ternären Nitrid-Verbindungen ist AlInN aus thermodynamischer Sicht am schwierigsten abzuschcheiden. Zum einen wird die Mischbarkeit der beiden beteiligten binären Mischungspartner AlN und Indiumnitrid (InN) durch den großen Unterschied der beiden Gitterkonstanten erschwert [22], zum anderen führen die beiden sehr unterschiedlichen idealen Wachstumstemperaturen von AlN und InN [23] dazu, dass die Wachstumstemperatur während der Abscheidung von AlInN immer einen Kompromiss zwischen den beiden idealen Wachstumstemperaturen der beiden binären Mischungspartner darstellt.

Um einen guten Einschluss der optischen Welle in der aktiven Zone einer Laserstruktur zu gewährleisten, sollte die Schichtdicke des AlInN in der Größenordnung eines halben Mikrometers liegen [24]. Bei der Abscheidung solch dicker c-orientierter Schichten rauen die

Schichten jedoch mit zunehmender Schichtdicke stark auf, und es geht mit dieser Aufrauung eine Aufspaltung in der Komposition einher [22, 25–27], welche von einigen Stimmen in der Literatur auf die spinodale Phasenseparation metastabiler Verbindungen zurückgeführt wird [27]. Aus diesem Grund liegt das Hauptaugenmerk des ersten Teils dieser Arbeit darauf, grundlegende Erfahrungen mit der Abscheidung des bisher in Braunschweig nicht genutzten Materialsystems AlInN zu erlangen und die auftretenden Probleme während der Abscheidung dicker c-orientierter Schichten zu untersuchen.

Da lange Zeit keine freistehenden GaN-Substrate existierten, basierten die meisten Bauelemente auf c-orientierten GaN-Schichten, welche auf Fremdsubstraten wie Saphir oder Siliciumcarbid abgeschieden wurden. Dank der Ammonothermal-Synthese ist es seit einiger Zeit möglich große GaN-Einkristalle von extrem hoher Qualität zu züchten und aus diesen Substrate mit nahezu beliebiger Orientierung zu schneiden [28]. Dies ermöglichte es, optisch aktive Bauelemente auf nicht- und semipolaren Facetten der Wurtzit-Struktur auf freistehenden GaN-Substraten mit äußerst geringen Defektdichten zu realisieren. Hierdurch lassen sich die spontanen und piezoelektrischen Felder innerhalb der Strukturen reduzieren bzw. ganz vermeiden [29].

Auch für nicht- und semipolare Strukturen bleibt für AlInN der große Vorteil des besseren Kontrasts im Brechungsindex gegenüber AlGaIn bestehen. Der Vorteil der Gitteranpassung geht für AlInN bei nicht- und semipolaren Strukturen jedoch aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten innerhalb der Wachstumsebene verloren. Dies wiederum eröffnet durch die gezielte Relaxation des AlInN in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsebene neue Wege für eine mögliche Einflussnahme auf die Eigenschaften späterer aktiver Schichten, welche für nicht- und semipolare Strukturen unter einer anisotropen Verspannung leiden [30].

Der zweite Teil dieser Arbeit beschäftigt sich aus diesem Grund mit der Abscheidung und Untersuchung von bisher äußerst wenig untersuchtem nicht- und semipolarem AlInN auf unterschiedlichen Substraten der m- und $(11\bar{2}2)$ -Orientierung. Ein wichtiger Aspekt liegt hierbei auf der Realisierbarkeit einer kontrollierten Relaxation in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsebene. Gleichzeitig wird untersucht, inwiefern sich die nicht- und semipolaren AlInN-Schichten von den polaren, c-orientierten Schichten bezüglich der während der Abscheidung auftretenden Probleme unterscheiden oder diesen ähneln.

2 Die Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride

In diesem Kapitel sollen die grundlegenden physikalischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride behandelt und diskutiert werden, welche zum weiteren Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Zunächst werden die strukturellen Eigenschaften wie z. B. die Kristallstruktur der Gruppe-III-Nitride in Kapitel 2.1 abgehandelt. Anschließend wird die bei der Heteroepitaxie¹ unterschiedlicher Materialien auftretende Verspannung im Kapitel 2.2 näher beleuchtet. Zuletzt werden im Kapitel 2.3 die Bandlücke und die elektronischen Eigenschaften der Gruppe-III-Nitride vorgestellt.

2.1 Strukturelle Eigenschaften

2.1.1 Kristallstruktur

Bei den Gruppe-III-Nitriden handelt es sich um kristalline chemische Verbindungen aus Elementen der dritten Hauptgruppe des Periodensystems und Stickstoff. Die Gruppe-III-Nitride kristallisieren in drei verschiedenen Kristallstrukturen: der kubischen Zinkblende-Struktur, der kubischen Steinsalzstruktur, auch Natriumchlorid-Struktur genannt, und der hexagonalen Wurtzit-Struktur [31].

Die Basis der kubischen Zinkblendestruktur, gezeigt in Abbildung 2.1 (a), bilden zwei Atome - typischerweise entgegengesetzter Polarität. Eines der beiden Basisatome sitzt im Ursprung des gewählten Koordinatensystems am Ort $(0,0,0)$, das andere am Ort $(1,1,1) \times a/4$. a ist hierbei die Gitterkonstante des sich ergebenden Kristalls. Gebildet wird der Kristall letztendlich aus zwei kubisch, flächenzentrierten Untergittern (engl.: *face centered cubic*, fcc), welche jeweils mit Anionen, respektive Kationen besetzt sind. Die beiden Untergitter sind um ein Viertel der Raumdiagonalen, also $(\sqrt{3}/4) \times a$, zueinander verschoben. Jedes Atom ist innerhalb eines solchen Kristallverbundes tetraedrisch koordiniert. Die Zinkblendestruktur ist allerdings metastabil und tritt bei den Gruppe-III-Nitriden nur unter bestimmten Wachstumsbedingungen auf [31].

¹ Von Heteroepitaxie wird im Rahmen dieser Arbeit auch immer dann gesprochen, wenn Materialien unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung, aber gleicher Kristallstruktur aufeinander abgeschieden werden.

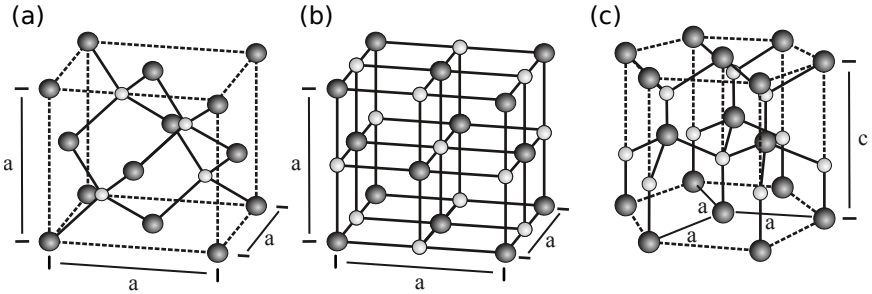


Abbildung 2.1: Die Kristallstrukturen von (a) Zinkblendestruktur, (b) Steinsalzstruktur und (c) Wurtzit-Struktur. Während die beiden kubischen Strukturen in alle drei Raumrichtungen die gleiche Gitterkonstante besitzen, besitzt die Wurtzit-Struktur zwei verschiedene Gitterkonstanten in der c -Fläche und senkrecht dazu.

Die kubische Steinsalzstruktur, auch Natriumchlorid-Struktur genannt, wird aus zwei um die Hälfte der Raumdiagonalen, also $(\sqrt{3}/2) \times a$ zueinander verschobenen fcc-Gittern gebildet. Die Untergitter der Steinsalzstruktur sind jeweils nur mit einem Typ von Atomen besetzt, also mit Kationen oder Anionen. Die Basis dieser Struktur bilden zwei Atome am Ort $(0,0,0)$ und $(1,1,1) \times a/2$. Als Konsequenz ist jedes Atom oktaedrisch an sechs Atome der jeweils entgegengesetzten Polarität gebunden. Die Steinsalzstruktur tritt für die Gruppe-III-Nitride nur bei sehr hohen Drücken während des Wachstums auf [32]. Eine schematische Darstellung der Steinsalzstruktur findet sich in Abbildung 2.1 (b).

Die häufigste und unter Normalbedingungen thermodynamisch stabile Struktur der Gruppe-III-Nitride ist die hexagonale Wurtzit-Struktur. Wie aus Abbildung 2.1 (c) ersichtlich ist, wird die Wurtzit-Struktur aus zwei hexagonalen Subgittern - eines für Anionen, eines für Kationen - gebildet. Beide Untergitter entsprechen der hexagonal dichtesten Kugelpackung (engl.: *hexagonal close-packed*, hcp). Im idealen Kristall sind die Bindungslängen der tetraedrisch gebundenen Atome in alle Raumrichtungen gleich lang und somit beide Subgitter um den Wert $u = 3/8 \times c = 0,375 \times c$ entlang der c -Achse verschoben. Das ideale Verhältnis von vertikaler zu lateraler Gitterkonstante in der Wurtzit-Struktur beträgt daher $c/a = \sqrt{8/3} = 1,633$.

In Tabelle 2.1 sind die experimentell bestimmten Gitterkonstanten der drei wichtigsten Gruppe-III-Nitride, also AlN, GaN und InN zusammen mit ihren c/a -Verhältnissen aufgelistet. Neben der Tatsache, dass alle drei c/a -Verhältnisse unterschiedlich sind, fällt ebenfalls auf, dass alle drei Werte ungleich dem Idealwert von $c/a = \sqrt{8/3} = 1,633$ sind.

Mit steigender Ordnungszahl des beteiligten Gruppe-III-Atoms nehmen die Gitterkonstanten der entsprechenden Nitridverbindungen zu. Es ist möglich, die Eigenschaften wie z. B.

Tabelle 2.1: Experimentell bestimmte Gitterkonstanten und die zugehörigen c/a -Verhältnisse der drei wichtigsten binären Gruppe-III-Nitride: AlN, GaN und InN.

Material	a (Å)	c (Å)	c/a
AlN	3,11197(2) [33]	4,98089(4) [33]	1,6006
GaN	3,18926 [34]	5,18523 [34]	1,6258
InN	3,5377 [35]	5,7037 [35]	1,612

die Gitterkonstante oder die Bandlücke, von Gruppe-III-Nitrid-Halbleitern durch gezielte Legierung mehrerer Verbindungen zu beeinflussen. Legierungen auf Basis von zwei, drei oder vier Komponenten werden binäre, ternäre, beziehungsweise quaternäre Verbindungen genannt. Als Beispiele seien an dieser Stelle die Legierungen GaN, GaInN und AlGaInN erwähnt. Typischerweise gibt es drei Möglichkeiten für die Verteilung der Atome in einer Legierung.

- Statistische Verteilung: Die Wahrscheinlichkeit, ein Atom eines bestimmten Typs auf den entsprechenden Atomplätzen zu finden, ist lediglich von ihrer jeweiligen Häufigkeit abhängig.
- Geordnete Legierung: Die Besetzung eines Atomplatzes mit einer Atomart beeinflusst damit die Besetzung der benachbarten Atomplätze. Oft resultiert hieraus eine periodische Struktur des Kristalls.
- Phasenseparation: Atome A und B mischen sich nicht untereinander und bilden ganz klar abgrenzbare Domänen der einzelnen binären Verbindungen aus.

Da die Wurtzit-Struktur, wie bereits erläutert, aus zwei hexagonalen Untergittern für die Anionen, bzw. Kationen besteht, verteilen sich die Gruppe-III-Atome auf ein anderes Gitter als der Stickstoff. Für die folgenden Betrachtungen wird bei der Legierung zweier binärer Verbindungen von einer rein statistischen Verteilung der Gruppe-III-Atome auf den Gitterplätzen des entsprechenden Untergitters ausgegangen. Die Gitterkonstanten von miteinander legierten Gruppe-III-Nitriden ergeben sich nach der Regel von Vegard [17]. Dabei handelt es sich um eine lineare Interpolation der Gitterkonstanten der beteiligten binären Verbindungen gemäß ihrer relativen Anteile am Mischkristall. Gleichung 2.1 verdeutlicht dies am Beispiel der a -Gitterkonstante der ternären Verbindung $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$. Es gilt:

$$a_{\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}} = (1 - x) \times a_{\text{AlN}} + x \times a_{\text{InN}} \quad (2.1)$$

Dem Mischungsverhältnis von AlN und InN entsprechend kann der Mischkristall alle Gitterkonstanten zwischen den Gitterkonstanten der binären Materialien annehmen. Da die

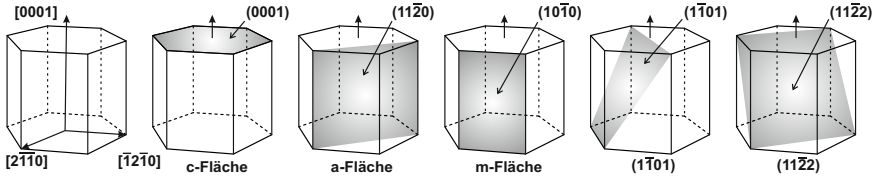


Abbildung 2.2: Übersicht einiger der wichtigsten Kristalloberflächen der Gruppe-III-Nitride in der Forschung. Von links nach rechts: Definition des Koordinatensystems, die polare c-Fläche, die nichtpolaren a- und m-Flächen, zwei semi-polare $(1\bar{1}01)$ - und $(11\bar{2}2)$ -Flächen.

Gitterkonstanten von InN und AlN größer beziehungsweise kleiner sind als die des GaN, wird es durch gezielte Legierung möglich, die Gitterkonstante des resultierenden ternären $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ an die Gitterkonstante des GaN anzupassen. Hier gilt es jedoch zu erwähnen, dass die Gitteranpassung aufgrund unterschiedlicher thermischer Ausdehnungskoeffizienten der beteiligten binären Materialien nur bei einer Temperatur Gültigkeit findet. In umgekehrter Weise wird die Bestimmung der Gitterkonstanten mittels hochauflösender Röntgenbeugung (engl.: *high resolution X-ray diffraction*, HRXRD) herangezogen, um die Zusammensetzungen von Legierungen zu bestimmen. Für Details diesbezüglich sei an dieser Stelle auf Kapitel 3.2.1 verwiesen.

2.1.2 Die verschiedenen Kristallflächen

Bei der Epitaxie von Heterostrukturen und ganzen Bauteilen sind jedoch nicht nur die typischen Kristallflächen von Interesse, welche sich direkt aus den Symmetrieeigenschaften der Wurtzit-Struktur ergeben. Eine ganze Vielzahl von unterschiedlich orientierten Flächen erfreuen sich heute in der Forschung und Entwicklung von elektronischen und optoelektronischen Bauteilen immer größer werdendem Zuspruch. In Abbildung 2.2 sind exemplarisch einige der wichtigsten kristallographischen Ebenen dargestellt. Die zuvor genannte Abweichung realer Gruppe-III-Nitride von den idealen Bindungslängen führt dazu, dass ein Atom im Verbund keine vier gleich langen Bindungen zu seinen nächsten Nachbaratomen besitzt. Dies wiederum führt zu einer makroskopischen spontanen Polarisierung des Kristalls entlang der c-Gitterkonstante in $[0001]$ -Richtung [36]. Die entstehenden elektrischen Felder haben eine Stärke von bis zu einigen wenigen MV cm^{-1} . Die Kristalloberflächen der Gruppe-III-Nitride werden in drei Kategorien eingeteilt: Die polaren, die nichtpolaren und die semi-polaren Flächen. Die jeweiligen Flächen haben entsprechend ihres Winkels in Bezug zur c-Richtung einen stark polaren bis nichtpolaren Charakter. Die c-Fläche, auch Basal-Fläche

genannt, ist die Fläche der stärksten spontanen Polarisierung. Flächen, deren Flächennormale senkrecht zur c -Achse stehen, sind nichtpolar. Flächen mit beliebigen Winkeln haben zumeist einen semi-polaren Charakter, d.h. sie sind weder polar, noch nichtpolar.

Eine weitere aus der Symmetrie der Wurtzit-Struktur resultierende Eigenschaft ist die, dass die zwei entgegengesetzten kristallographischen Richtungen $[0001]$ und $[000\bar{1}]$ nicht äquivalent sind. Die $[0001]$ -Richtung zeigt entlang der c -Achse von einem Kation, also einem Atom der dritten Hauptgruppe, zu einem Anion, also einem Stickstoffatom [37]. Die Probenoberfläche wird Ga-polar genannt, wenn ihre Oberflächennormale parallel zur $[0001]$ -Richtung steht. Entsprechend wird die Oberfläche N-polar genannt, wenn die Oberflächennormale antiparallel zur $[0001]$ -Richtung steht, bzw. parallel zur $[000\bar{1}]$ -Richtung ist. Unabhängig von der Polarität können die Probenoberflächen unterschiedlich terminiert sein.

2.2 Die Elastizitätstheorie

Sind Substrat und epitaktisch abgeschiedene Schicht chemisch und gegebenenfalls strukturell unterschiedlich, so wird im Allgemeinen von einer Heterostruktur gesprochen. Haben das Substrat und die darauf abgeschiedene Schicht unterschiedliche freistehende Gitterkonstanten in der Wachstumsebene, so berechnet sich die sogenannte Gitterfehlpassung f aus den freistehenden Gitterkonstanten der Schicht a_L und des Substrats a_S . Es gilt:

$$f = \frac{a_S - a_L}{a_L} \quad (2.2)$$

Da die freistehende Gitterkonstante der Epitaxieschicht a_L größer, aber auch kleiner sein kann als die Gitterkonstante des Substrats a_S , kann die Gitterfehlpassung sowohl positiv als auch negativ sein. Ist die Gitterkonstante der Epitaxieschicht a_L größer als die des Substrats a_S , so ist die Gitterfehlpassung negativ ($f < 0$). Eine kleinere Gitterkonstante der Schicht resultiert in einer positiven Gitterfehlpassung ($f > 0$).

Adaptiert nun die aufgewachsene Schicht ganz oder auch nur teilweise die Gitterkonstante des Substrats in der Wachstumsebene, so wird die Epitaxieschicht in der Ebene verspannt, was wiederum zu einer Dehnung bzw. Stauchung der Schicht führt. Die Dehnung ε einer Epitaxieschicht berechnet sich aus ihrer freistehenden Gitterkonstante a_L und der gemessenen Gitterkonstante $a_{L,exp}$. Die Dehnung ε berechnet sich dann nach:

$$\varepsilon = \frac{a_{L,exp} - a_L}{a_L} \quad (2.3)$$

Die Adaption einer kleineren Gitterkonstanten in der Wachstumsebene führt zu einer Stauchung der Gitterkonstanten in Wachstumsrichtung. Die Adaption größerer Gitterkonstanten

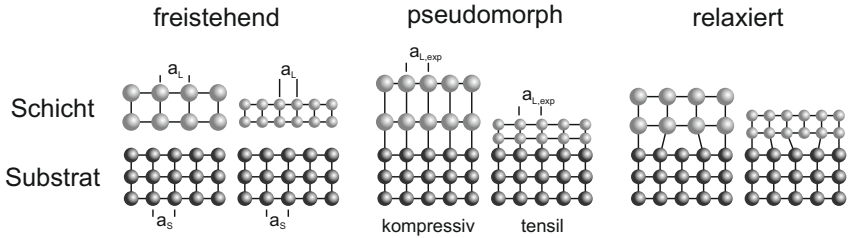


Abbildung 2.3: Unterscheiden sich die Gitterkonstanten von Substrat und epitaktischer Schicht, besteht die Möglichkeit des pseudomorphen Wachstums. Ist die Gitterkonstante der Schicht größer als die des Substrats so entsteht eine kompressive Verspannung beim pseudomorphen Wachstum. Eine kleinere Gitterkonstante der Schicht führt zur tensilen Verspannung. Wird die Verspannungsenergie zu groß, so kann diese über die Generierung von Versetzungen und die damit einhergehende Relaxation abgebaut werden.

in der Wachstumsebene führt zu einer Dehnung der Gitterkonstante in Wachstumsrichtung. Es wird in diesem Zusammenhang auch von einer kompressiven ($\epsilon < 0$), bzw. tensilen ($\epsilon > 0$) Verspannung gesprochen. Die Verspannung der Epitaxieschicht kann zusätzlich zu einer Krümmung der Probe führen. Ist die Schicht kompressiv verspannt, so krümmt sich die Probe in der Mitte in Richtung der Schicht nach oben. Sie ist in diesem Fall konvex gekrümmt. Bei einer tensilen Verspannung der Epitaxieschicht aufgrund einer kleineren Gitterkonstante krümmen sich die Ränder der Probe nach oben. Allgemein wird in diesem Fall von einer konkaven Krümmung gesprochen. Die zwei Arten der Gitterfehlanpassung bzw. Dehnung sind schematisch in Abbildung 2.3 dargestellt.

2.2.1 Das Hookesche Gesetz

Solange die Verspannung des Kristalls nicht zu groß ist, kann das Wechselwirkungspotential zwischen den einzelnen Atomen harmonisch genähert werden. Aus dieser Tatsache folgt ein linearer Zusammenhang zwischen der Verspannung des Kristalls und der resultierenden Verformung. Das Hookesche Gesetz beschreibt das Verhalten von Festkörpern dreidimensional durch den Elastizitätstensor C . Hierbei handelt es sich um einen Tensor vierter Ordnung, also einen Tensor mit $3^4 = 81$ Koeffizienten. Die Dehnung ϵ und die Spannung σ werden über den Elastizitätstensor C miteinander verknüpft. Es gilt:

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} C_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (2.4)$$

Werden alle Symmetrien eines Festkörpers berücksichtigt, so reduzieren sich die Einträge, welche ungleich Null sind, auf eine Zahl von 36 Koeffizienten. Nach der Voigtschen Notation

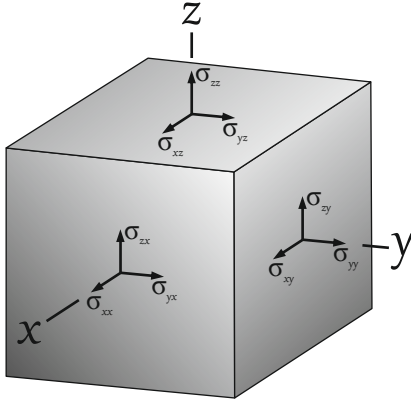


Abbildung 2.4: Veranschaulichung der einzelnen Komponenten der auftretenden Spannungen innerhalb eines Festkörpers. Bei σ_{xx} , σ_{yy} und σ_{zz} handelt es sich um Spannungen, welche senkrecht auf den entsprechenden Oberflächen stehen. Diese führen somit zu Dehnungen, respektive Stauchungen in die jeweilige Richtung. Bei allen anderen Einträgen handelt es sich um Scherspannungen.

tion kann dieser Tensor durch die Beziehung $C_{ijkl} = C_{mn}$ ($i, j, k, l = 1, 2, 3; m, n = 1, \dots, 6$) als 6×6 -Matrix geschrieben werden. Des Weiteren ist C ein symmetrischer Tensor mit letztendlich 21 unabhängigen Koeffizienten. Eine weitere Reduzierung der unabhängigen Einträge aufgrund der hochsymmetrischen Kristallstruktur [38] führt im Falle der Wurtzit-Struktur zu lediglich fünf unabhängigen Einträgen. Das Hookesche Gesetz lässt sich somit schreiben als:

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (2.5)$$

Zum besseren Verständnis der einzelnen Elemente sind die entstehenden Verspannungen in Abbildung 2.4 noch einmal anschaulich dargestellt. Im Folgenden gehen wir von einer freistehenden Schichtstruktur, bestehend aus einem Substrat und einer epitaktisch aufgewachsenen Schicht, aus. Sowohl das Substrat als auch die darauf abgeschiedene Schicht besitzen die gleiche Kristallstruktur. Sie unterscheiden sich jedoch in ihren freistehenden Gitterkonstanten und der Dicke. Die Dicke des Substrats d_S soll wesentlich größer sein als die Dicke der Schicht d_L , also $d_S \gg d_L$. Das Koordinatensystem wird so gewählt, dass die x-Achse in Richtung der a -Richtung des Kristalls liegt. Die y-Achse fällt mit der m -Richtung des Kristalls zusammen. Die z-Achse entspricht der c -Richtung. Gemäß den in Abbildung 2.2 dargestellten verschiedenen möglichen Orientierungen der WachstumsOber-

fläche existieren mehrere Fälle. Zunächst widmen wir uns dem einfachsten dieser Fälle - der c -Fläche. Wird die epitaktische Schicht mit der Gitterkonstante a_L auf einem Substrat mit der Gitterkonstante a_S abgeschieden, so adaptiert diese die laterale Gitterkonstante des Substrats und wird daraus resultierend verspannt. Im Fall einer vollverspannten Schicht bedeutet dies, dass diese die Gitterkonstante des Substrats vollständig adaptiert. Die beiden Dehnungen bzw. Stauchungen parallel zur Oberfläche $\epsilon_{||}$ sind dann ϵ_{xx} und ϵ_{yy} . Die Verspannung der Schicht in der Wachstumsebene ist in diesem Fall isotrop. Da das Substrat sehr viel dicker sein soll als die Schicht, betrachten wir nur den Fall, dass allein die Schicht verformt wird. Es gilt demnach für die laterale Verformung der Schicht in der Wachstumsebene:

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{||} = \frac{a_S - a_L}{a_L} \quad (2.6)$$

Da es sich im vorliegenden Fall um eine freistehende Struktur handelt, wirkt auf diese keine Kraft in z -Richtung. Anders ausgedrückt: die Spannung auf die Struktur in z -Richtung ist gleich Null. Es gilt also:

$$\sigma_{zz} = 0 = C_{13}\epsilon_{xx} + C_{13}\epsilon_{yy} + C_{33}\epsilon_{zz} \quad (2.7)$$

Durch Umstellen nach ϵ_{zz} und Einsetzen von $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{||}$ ergibt sich somit für die Dehnung bzw. Stauchung der Struktur in Wachstumsrichtung:

$$\epsilon_{zz} = \epsilon_{\perp} = - \left(\frac{2C_{13}}{C_{33}} \epsilon_{||} \right) \quad (2.8)$$

Aus dieser Gleichung ist schnell ersichtlich, dass die Verspannung in der (0001)-Ebene $\epsilon_{||}$ und senkrecht zur Wachstumsebene ϵ_{\perp} entgegengesetzte Vorzeichen besitzen. Eine kompressive Verspannung in der Ebene ($\epsilon_{||} < 0$) führt somit zu einer Dehnung senkrecht zur Wachstumsebene in Wachstumsrichtung ($\epsilon_{\perp} > 0$, vgl. Abbildung 2.3).

Im Laufe dieser Arbeit werden neben dem Wachstum auf polaren, c -orientierten (0001)-Flächen auch nicht- und semi-polare Flächen von Interesse sein. Im Falle der nichtpolaren ($1\bar{1}00$)-, auch m -Fläche genannt, reduziert sich die Symmetrie bereits erheblich. Im zuvor gewählten Koordinatensystem ist die Wachstumsfläche nun die x - z -Ebene. Die Wachstumsrichtung ist die y -Richtung. Aufgrund der Tatsache, dass die c - und a -Gitterkonstanten eines Gruppe-III-Nitrids unterschiedlich sind, ist die Verspannung in der Wachstumsebene nicht länger isotrop. Die Verformung der Epitaxieschicht in x -Richtung berechnet sich aus der freistehenden a -Gitterkonstante a_L und der realen, gemessenen a -Gitterkonstante $a_{L,exp}$. Die z -Richtung entspricht der c -Richtung. Somit berechnet sich die Verspannung in diese Richtung aus den freien und gemessenen c -Gitterkonstanten c_L und $c_{L,exp}$. ϵ_{xx} beziehungsweise ϵ_{zz} berechnen sich somit zu:

$$\epsilon_{xx} = \frac{a_{L,exp} - a_L}{a_L} \text{ und } \epsilon_{zz} = \frac{c_{L,exp} - c_L}{c_L} \quad (2.9)$$

Unabhängig von der Symmetrie wird auch in diesem Fall angenommen, dass in Wachstumsrichtung keine Kraft auf die Schicht wirkt. Es gilt also:

$$\sigma_{yy} = 0 \quad (2.10)$$

Wird diese Annahme in das Hookesche Gesetz eingefügt, resultiert daraus der Ausdruck für die Deformation in y-Richtung.

$$\epsilon_{yy} = - \left(\frac{C_{12}\epsilon_{xx} + C_{13}\epsilon_{zz}}{C_{11}} \right) \quad (2.11)$$

Bisher sind zwei Spezialfälle der möglichen Orientierungen der Wachstumsebene von Gruppe-III-Nitriden betrachtet worden - die polare, c-orientierte Wachstumsebene und die nicht-polare, m-orientierte Ebene. Um den allgemeinen Fall der semi-polaren Wachstumsebenen zu behandeln, ist es nötig, das Koordinatensystem zu drehen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die semi-polare $(1\bar{1}22)$ -Ebene verwendet. Anhand dieser Orientierung soll das Vorgehen einmal exemplarisch dargestellt werden.

Das Koordinatensystem wird um die $[1\bar{1}00]$ -, also die m -Richtung, gedreht. z' entspricht der Wachstumsrichtung [39], hier $(1\bar{1}22)$. Die Rotationsmatrix bei einer Drehung des Koordinatensystems um den Winkel Θ lautet somit:

$$l_m = \begin{pmatrix} \cos \Theta & 0 & \sin \Theta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \Theta & 0 & \cos \Theta \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Die Verzerrung ϵ , die Verspannung σ und der Elastizitätstensor C müssen mit Hilfe der Rotationsmatrix l_m in das neue Koordinatensystem transformiert werden. Der Einsteinschen Summenkonvention folgend gelten für die Ausdrücke [38]:

$$\begin{aligned} \epsilon'_{pq} &= l_{pi} \cdot l_{qj} \cdot \epsilon_{ij} \\ \sigma'_{pq} &= l_{pi} \cdot l_{qj} \cdot \sigma_{ij} \\ C'_{pqrs} &= l_{pi} \cdot l_{qj} \cdot l_{rk} \cdot l_{sl} \cdot C_{ijkl} \end{aligned} \quad (2.13)$$

Auch in diesem Fall gehen wir davon aus, dass der Kristall in Wachstumsrichtung, hier also z' , keine von außen angelegte Kraft erfährt. Es muss also $\sigma'_{zz} = 0$ gelten. Aus diesem Sachverhalt ergibt sich für die Dehnung bzw. Stauchung in Wachstumsrichtung:

$$\begin{aligned} \epsilon'_{zz} = & - \frac{1}{4C_{44}} \left[\left(C_{11} + C_{13} + (-C_{11} + C_{13}) \cos 2\Theta - 4C_{44} \sin^2 \Theta \right) \epsilon_{xx} \right. \\ & + (C_{12} + C_{13} + (-C_{12} + C_{13}) \cos 2\Theta) \epsilon_{yy} \\ & \left. + \left(C_{13} + C_{33} + (-C_{13} + C_{33}) \cos 2\Theta - 4C_{44} \cos^2 \Theta \right) \epsilon_{zz} \right] \end{aligned} \quad (2.14)$$

Diese allgemeine Lösung für um die m -Richtung verkippte Ebenen beinhaltet bereits zwei Sonderfälle. Für einen Winkel $\Theta = 0^\circ$ handelt es sich um die polare, (0001)-Ebene mit

$$\epsilon'_{zz} = \epsilon_{zz} = -(2C_{13}/C_{33})\epsilon_{xx}.$$

Für den Fall $\Theta = 90^\circ$ ist es die a -Fläche mit

$$\epsilon'_{zz} = \epsilon_{xx} = -(C_{12}\epsilon_{yy} + C_{13}\epsilon_{zz})/C_{11}.$$

2.2.2 Kritische Schichtdicke und Defekte

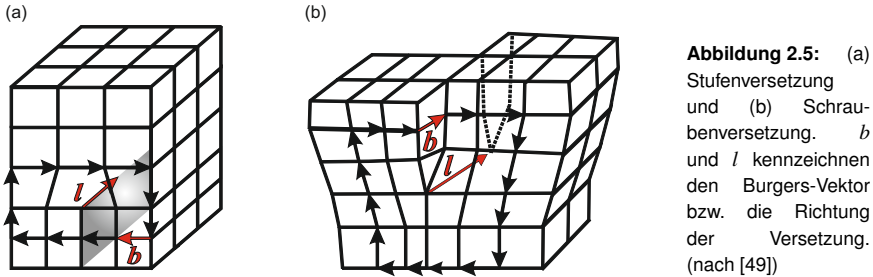
In den bisherigen Betrachtungen sind die epitaktisch abgeschiedenen Schichten immer als pseudomorph, also vollverspannt angenommen worden. Verspannte Schichten - wie in Abbildung 2.3 gezeigt - enthalten immer eine Verspannungsenergie E in Abhängigkeit vom betrachteten Volumen V . Es gilt [40]:

$$\frac{E}{V} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^6 \sum_{k=1}^6 \epsilon_i C_{ik} \epsilon_k. \quad (2.15)$$

Die Verspannungsenergie steigt linear mit der Schichtdicke der verspannten Schicht an und ist quadratisch von der Verformung selbst abhängig. Übersteigt diese Verspannungsenergie einen bestimmten Wert, so kommt es zur Relaxation. Hierbei wird Verspannungsenergie plastisch über die Generation von Gitterfehlpassungsversetzungen abgebaut. Zur Berechnung der kritischen Schichtdicke existieren einige unterschiedliche Modelle. Allen gemeinsam ist jedoch, dass mit einer Energiebilanz aus der Verspannungsenergie und der benötigten Energie für die Generierung der Versetzungen gerechnet wird. Frühe Arbeiten von Frank *et al.* beschreiben die plastische Relaxation mit Hilfe einer Reihe parallel angeordneter, äquidistanter Gitterfehlpassungsversetzungen [41–43], oder einem zweidimensionalen Raster aus Versetzungen an der Grenzfläche zwischen Substrat und epitaktischer Schicht [44, 45]. Einen etwas einfacheren Ansatz verfolgt das Modell von Matthews and Blakeslee. Hier werden die Kräfte betrachtet, welche auf eine Versetzung wirken. Die Relaxation erfolgt durch Durchstoßversetzungen, welche an der Grenzfläche von Substrat und epitaktischer Schicht abknicken, oder durch Bildung von Versetzungen, welche bis zum Substrat reichen [46]. Die kritische Schichtdicke h_c berechnet sich nach diesem Modell zu:

$$h_c = \frac{b}{2\pi f} \frac{(1 - \nu \cos^2 \alpha)}{(1 + \nu) \cos \lambda} \left(\ln \frac{h_c}{b} + 1 \right). \quad (2.16)$$

Hier sind b , f und ν der Burgers-Vektor der generierten Versetzung, die Gitterfehlpassung und die Poissonzahl. α ist der Winkel zwischen dem Burgers-Vektor der Versetzung und der Versetzungslinie. λ ist der eingeschlossene Winkel zwischen Gleitrichtung und der



Senkrecht auf die Linie, welche aus Gleitebene und Grenzfläche gebildet wird und in der Grenzfläche liegt. Nach Srinivasan *et al.* ist das wichtigste System für polare, (0001)-orientierte Systeme das $\{11\bar{2}2\} \times \langle 11\bar{2}3 \rangle$ -Gleitsystem [47]. Dies bedeutet, dass die Gleitebene die $\{11\bar{2}2\}$ -Ebene und äquivalente sind. Der Burgers-Vektor der generierten Versetzungen ist $b = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$. Die Relaxation von semi-polaren Strukturen erfolgt jedoch über das (0001) \times $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ -System [48]. Die Gleitebene ist hier die (0001)-Basalfläche, der Burgers-Vektor der Versetzungen ist $b = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$.

Im Folgenden sollen die verschiedenen Typen von möglichen Defekten und Begriffe wie Burgers-Vektor oder Gleitebene noch ein wenig ausführlicher erläutert werden. Unter dem Begriff Kristalldefekt werden alle Bereiche eines Kristalls zusammengefasst, welche nicht der mikroskopischen Ordnung eines perfekten Einkristalls entsprechen. Je nach betroffener Region des Defekts wird zwischen Punktdefekten, Liniendefekten und Oberflächendefekten unterschieden.

Versetzungen sind Liniendefekte. Liniendefekte werden durch zwei Vektoren beschrieben und charakterisiert. Zum einen beschreibt der Vektor \vec{l} die Richtung der Versetzungslinie. Bei diesem Vektor handelt es sich um einen Einheitsvektor in Richtung der Versetzungslinie. Zum anderen gibt der Burgers-Vektor b Aufschluss über den Typ der Versetzung. Der Burgers-Vektor b wird durch einen geschlossenen Umlauf um den Kern der Versetzung konstruiert. Das Vorgehen zur Bestimmung des Burgers-Vektors ist in Abbildung 2.5 schematisch dargestellt. Der Burgers-Vektor ist jener Vektor, welcher einen aus einem defektfreien Referenzkristall übertragenen Weg im realen Kristall vervollständigt. Entsprechend der Rechte-Hand-Regel wird beim Blick in positive Richtung der Versetzungsrichtung der Umlauf um die Versetzung im Uhrzeigersinn vorgenommen. Es kann bei vielen Versetzungen nicht vermieden werden, dass eine gewisse Willkürlichkeit bestehen bleibt. Sollte ein Umlauf mehrere Versetzungen einschließen, so entspricht der ermittelte Burgers-Vektor der geometrischen Summe der Burgers-Vektoren aller eingeschlossenen Versetzungen.

Im Allgemeinen wird zwischen zwei Typen von Versetzungen unterschieden: Stufenverset-

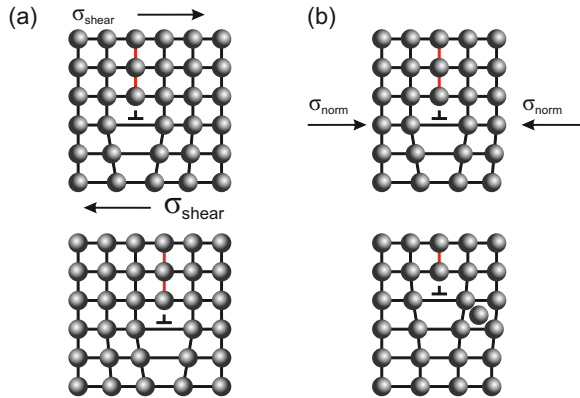


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung einer Stufenversetzung (a) beim Prozess des Gleitens und (b) beim Prozess des Kletterns. σ_{shear} und σ_{norm} bezeichnen die Scher-, bzw. Normalspannung, welche im Kristall auftreten. (nach [49])

zungen und Schraubenversetzungen. Stufenversetzungen zeichnen sich dadurch aus, dass der Burgers-Vektor b und die Richtung der Versetzung l senkrecht aufeinander stehen. Stufenversetzungen werden durch Einfügen einer zusätzlichen Halbebene gebildet, welche aus l und dem Kreuzprodukt $l \times b$ aufgespannt wird (siehe Abbildung 2.5a). Bei einer Schraubenversetzung stehen b und l parallel. Wie in Abbildung 2.5b gezeigt, wird hierbei ein Teil des Festkörpers um die Strecke b in Bezug auf den Rest des Festkörpers verschoben. Die häufigsten Versetzungen in realen Kristallen haben jedoch einen Mischcharakter, d. h. sie besitzen sowohl einen Stufen- als auch einen Schraubenanteil. Diese werden typischerweise mit Hilfe des Skalarprodukts aus b und l charakterisiert. Reine Stufenversetzungen zeichnen sich also durch $b \cdot l = 0$ aus, reine Schraubenversetzungen durch $b \cdot l = b$. An dieser Stelle wird auch klar, dass es sich bei dem Vektor l per Definition um einen Einheitsvektor handeln muss. Der Burgers-Vektor entlang einer Versetzung ändert sich solange nicht, wie die Versetzungslinie eine Gerade ist. Infolgedessen ändert sich die Art einer Versetzung nicht. Beim Abknicken einer Versetzung hingegen ändert sich auch der Burgers-Vektor.

Geometrische Überlegungen zeigen, dass Versetzungen nicht an beliebiger Stelle im Kristall beginnen oder enden können [50]. Versetzungen müssen daher einen geschlossenen Ring bilden oder an Grenzflächen zwischen zwei Schichten oder Korngrenzen beginnen und enden. Unter Einwirkung von äußeren Kräften können sich Versetzungen im Kristall bewegen. Es werden zwei verschiedene Arten der Bewegung von Versetzungen unterschieden: Gleit- und Kletterbewegungen (vgl. Abbildung 2.6). Die absolute Anzahl der Atome und Gitterplätze bleibt bei einem solchen Prozess unverändert. Für reine Stufenversetzungen kann der Prozess des Gleitens lediglich innerhalb einer Gleitebene stattfinden, welche sowohl den Burgers-Vektor der Versetzung als auch die Versetzungslinie enthält. Schraubenversetzungen hingegen können in beliebige Richtungen gleiten, da hier b und l parallel stehen und somit immer in einer Ebene liegen. Das Klettern einer Versetzung erfolgt nur in

Ebenen, welche die Versetzungslinie enthalten, aber senkrecht auf den Burgers-Vektor der Versetzung stehen. Das Klettern einer Versetzung ist immer mit einem Materialtransport verknüpft, d.h. mit der Emission oder Absorption von interstitiellen Atomen oder Vakanzen, welche beide zu den Punktdefekten gehören [49]. Dies ist in Abbildung 2.6b schematisch dargestellt.

Zuvor wurde bereits erläutert, wie ein verspannter Kristall durch Generation von Gitterfehl-anpassungsversetzungen Verspannungsenergie abbauen kann. Da Versetzungslinien jedoch nicht im Kristall beginnen oder enden können, müssen diese bis zur Oberfläche reichen. Es existieren zwei mögliche Wege, über die dies geschehen kann. Es besteht z. B. die Möglichkeit, dass bereits im Substrat eine Versetzung mit entsprechendem Burgers-Vektor existiert, welche an der Oberfläche endet. Diese Versetzung kann in der Schicht wieder aufgegriffen werden und verläuft weiter durch die Schicht hindurch in Wachstumsrichtung. Daher werden diese Versetzungen auch Durchstoßversetzungen genannt. Diese Durchstoßversetzungen können an der Grenzfläche abknicken und an dieser entlang gleiten. Auf diese Art und Weise kann schließlich eine Verspannungsenergie abbauende Gitterfehl-anpassungsversetzung an der Grenzfläche gebildet werden. Eine zweite Möglichkeit ist die Generierung einer Versetzungsschleife mit beiden Enden an der Oberfläche der Schicht, welche dann über Gleitebenen bis hin zur Grenzfläche gleitet und auf diese Art eine Gitterfehl-anpassungsversetzung bildet.

Sogenannte Korngrenzen gehören zu den Oberflächendefekten. Hierbei handelt es sich um mikroskopische Bereiche des Kristalls mit unterschiedlichen kristallographischen Orientierungen. Im Bereich der Korngrenze geht die kristallographische Orientierung des einen Korns in die Orientierung des benachbarten Korns über. Solange die Fehlanpassung der beiden benachbarten Körner klein ist, also im Bereich weniger Grad liegt, so wird von „Kleinwinkel-Korngrenzen“ gesprochen. Die einzelnen Bereiche haben zwei mögliche Freiheitsgrade, wie sie zueinander stehen können. In Wachstumsrichtung gesehen können die einzelnen Kristallite zueinander verkippt oder verdreht sein. Im Falle der Verkippfung der einzelnen Kristallite zueinander handelt es sich um den sogenannten *Tilt* (engl.: *tilt*, Verkippfung). Sind die Kristallite zueinander verdreht, wird im Allgemeinen von *Twist* gesprochen (engl.: *twist*, Verdrehung). Aufgrund der begrenzten Ausdehnung der einzelnen perfekt einkristallinen Bereiche kommt es in der Röntgenbeugung an solchen Strukturen zu einer begrenzten Kohärenz der gebeugten Röntgenstrahlung. Die vertikale Ausdehnungen der hoch geordneten Bereiche in Wachstumsrichtung bzw. in der Wachstumsebene werden daher auch vertikale und laterale Kohärenzlänge genannt. Diese Tatsache wird bei der strukturellen Untersuchung an solchen Schichten und Heterostrukturen mittels hochauflösender Röntgenbeugung genutzt, um Aussagen über die kristalline Qualität treffen zu können. Metzger *et al.* fanden heraus, dass die Verkippungen der einzelnen Kristallite zueinander durch Versetzungen mit gemischtem Charakter aus Stufen- und Schraubenversetzungen

Tabelle 2.2: Bandlücken-Energien der drei wichtigsten binären Gruppe-III-Nitride: Aluminiumnitrid, Galliumnitrid und Indiumnitrid.

Material	E_g (4 K)	E_g (300 K)
AlN	6,09 [52]	6,00 [52]
GaN	3,51 [53]	3,45 [53]
InN	0,67 [54]	0,61 [54]

hervorgehoben werden, wobei reine Stufenversetzungen der Grund für eine Verdrehung der Kristallite zueinander sind [51]. Für tiefergehende Informationen sei an dieser Stelle auf Kapitel 3.2.1 verwiesen.

2.3 Bandlücke und elektronische Eigenschaften

2.3.1 Die Bandlücke der Gruppe-III-Nitride

Wird bei Halbleitern von der Bandlücke gesprochen, so ist der energetische Abstand zwischen dem Maximum des obersten Valenzbandes und dem Minimum des untersten Leitungsbandes gemeint. Bei den Gruppe-III-Nitriden liegen beide Extrema am Γ -Punkt, in der Mitte der ersten Brillouin-Zone. Es handelt sich bei den Gruppe-III-Nitriden AlN, GaN und InN somit um direkte Halbleiter.

Die Bestimmung der Bandlücke eines Materialsystems ist jedoch weit davon entfernt trivial zu sein. So wurde z. B. die Bandlücke des InN lange kontrovers diskutiert und vielfach korrigiert. Frühe Absorptionsmessungen an gesputterten InN-Dünnschichtstrukturen von Mitte der sechziger Jahre bis in die frühen neunziger Jahre des letzten Jahrhunderts hinein deuteten auf eine Energie der Bandlücke von 1,7 eV bis 2,2 eV hin [55–58]. Spätere Fortschritte in der Abscheidung einkristalliner InN-Schichten brachten eine drastische Neubestimmung der Bandlücke mit sich [59–62]. Inzwischen zeigte sich, dass die Bandlücke von InN am ehesten im Bereich von 0,7 eV und darunter liegt [54, 63, 64]. In Tabelle 2.2 sind die Bandlücken-Energien der drei wichtigsten Gruppe-III-Nitride bei der Temperatur flüssigen Heliums ($T = 4$ K) und Raumtemperatur ($T = 300$ K) gezeigt.

Auch bei der Legierung zweier oder mehrerer dieser binären Verbindungen zu ternären oder quaternären Verbindungen bleibt die Bandlücke direkt. Im Gegensatz zur Gitterkonstante kann die Bandlücke bei der Legierung zweier binärer Gruppe-III-Nitride nicht ihren Mischungsanteilen entsprechend linear interpoliert werden. Für die Berechnung der Bandlücke ternärer Verbindungen muss eine quadratische Abhängigkeit von der Zusammensetzung angenommen werden [65]. Der Krümmungsparameter b ist materialspezifisch und in

der Schreibweise aus Gl.2.17 immer positiv. Dies bedeutet, dass es bei der Legierung zweier binärer Materialien immer zu einer Absenkung der effektiven Bandlücke des ternären Materials gegenüber der linearen Interpolation der beiden Bandlücken der binären Materialien kommt. So gilt beispielsweise für die Bandlücke $E_{g,Al_{1-x}In_xN}$ des ternären Materials $Al_{1-x}In_xN$:

$$E_{g,Al_{1-x}In_xN} = (1-x) \cdot E_{g,AlN} + x \cdot E_{g,InN} - x \cdot (1-x) \cdot b_{AlInN} \quad (2.17)$$

Die Krümmungsparameter ternärer Gruppe-III-Nitride sind noch heute Gegenstand aktueller Forschung. Gerade der Krümmungsparameter des $Al_{1-x}In_xN$ wird in der Literatur sehr kontrovers diskutiert. So ermittelten z. B. Wu *et al.* mit Hilfe von Transmissionsmessungen einen Wert für den Krümmungsparameter des $Al_{1-x}In_xN$ von $b_{AlInN} = 3,0 \text{ eV}$ [66]. Goldhahn *et al.* veröffentlichten einen Wert von $b = 4,0 \text{ eV}$ - gemessen mittels spektroskopischer Ellipsometrie [67]. Es sind aber auch Werte von $b = 4,7 \text{ eV}$ [68] und sogar $b = 10,3 \text{ eV}$ [69] in der Literatur zu finden. Da sich die Bandlücken von $Al_{1-x}In_xN$ -Schichten mit Zusammensetzungen über besonders große Bereiche nicht zwangsläufig mit einem einzelnen, skalaren Krümmungsparameter anpassen lassen, werden in der Literatur bereits kompositionabhängige Krümmungsparameter $b(x)$ diskutiert [70, 71].

Aber auch der Krümmungsparameter des eigentlich sehr gut erforschten und verstandenen Materialsystems GaInN steht noch immer in der Diskussion. Wu *et al.* bestimmten mittels Absorption einen Wert von $b_{GaInN} = 1,4 \text{ eV}$ [72]. Die mittels Photolumineszenz gemessenen Energien emittierter Photonen lassen sich jedoch mit einem Krümmungsparameter von $b_{GaInN} = 2,5 \text{ eV}$ besser beschreiben [73, 74]. Da bei der Photolumineszenz jedoch das Problem auftritt, dass Elektron-Loch-Paare bevorzugt an Potentialminima miteinander rekombinieren, wird in diesem Fall nicht zwingend die mittlere Bandlücke des Materials gemessen, sondern lediglich Minima, welche z. B. durch Fluktuationen im Indiumgehalt zu Stande kommen können. Da bei Absorptionsmessungen jedoch eher die mittlere Bandlücke des Materials die größte Rolle spielt, kann davon ausgegangen werden, dass die Werte von Wu *et al.* verlässlicher sind, als mittels PL bestimmte Werte.

Das Gleiche gilt auch im Falle des AlInN. Auch hier werden lokale Fluktuationen im Indiumgehalt auftreten, welche zu einer Verschiebung der mittels PL gemessenen Bandlücke führen werden. Ebenso wird in der Literatur immer öfter von einem ungewollten, parasitären Einbau von Gallium in die AlInN-Schichten berichtet [75–79]. Wird die Zusammensetzung in diesen Fällen jedoch als eine ternäre AlInN-Schicht angenommen, so passen die resultierende Bandlücke und die Zusammensetzung der Schicht nicht zueinander. Dieser Fehler ist unabhängig von der Methode zur Bestimmung der Bandlücke bzw. des Krümmungsparameters.

Ungeachtet aller zuvor genannten möglichen Ursachen für Abweichungen der experimentell bestimmten Krümmungsparameter existiert noch eine weitere wesentlich grundlegend-

ere Quelle für mögliche Fehler. So ist ebenfalls für das binäre Materialsystem GaN eine Streuung der experimentell bestimmten Werte für die Bandlücke in der Literatur zu finden. Dies führen Monemar *et al.* auf unterschiedliche Verspannungszustände der unterschiedlich hergestellten Schichten zurück [80]. Da der Verspannungszustand einen starken Einfluss auf die resultierende Bandlücke eines Materials besitzt, ist dies bei fehlerhafter oder gar fehlender Berücksichtigung eine mögliche Ursache für falsch bestimmte Werte für die Bandlücke eines ternären Materials. Die aus dem Verlauf der Bandlücke des Materials stammenden Werte für die Krümmungsparameter sind somit auch fehlerbehaftet.

2.3.2 Heterostrukturen

Um auf Basis der Gruppe-III-Nitride optisch aktive Bauelemente - wie z. B. Laser (Laser, engl.: *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*), oder LEDs (LED, Licht emittierende Diode) - zu realisieren, wird sich der Methode der Doppelheterostrukturen bedient. Hierbei bildet ein Material kleinerer elektrischer Bandlücke zwischen zwei Schichten größerer elektrischer Bandlücke die optisch aktive Zone. Es werden zwei Typen von Doppelheterostrukturen unterschieden. In einer Doppelheterostruktur vom Typ I werden sowohl die Elektronen als auch die Löcher in der Schicht der kleineren Bandlücke lokalisiert. Bei der Doppelheterostruktur vom Typ II werden die Elektronen und die Löcher räumlich voneinander getrennt, da sie in unterschiedlichen Schichten ihr Potentialminimum finden. Die Verläufe der Valenz- bzw. Leitungsbänder von Doppelheterostrukturen vom Typ I, bzw. II sind schematisch in Abbildung 2.7 dargestellt. Es hat sich gezeigt, dass alle Heterostrukturen auf Basis der Gruppe-III-Nitride Heterostrukturen vom Typ I sind [81]. Ist die räumliche Ausdehnung d einer solchen Struktur in der Größenordnung der De-Broglie-Wellenlänge d_{dB} der Ladungsträger, oder kleiner, so wird von einer reduzierten Dimension des Systems gesprochen. Es muss also gelten:

$$d \leq d_{dB} = \frac{h}{p} \quad (2.18)$$

Aufgrund der Zweidimensionalität der Doppelheterostruktur wird auch von einem sogenannten Quantenfilm gesprochen. Das einfachste Modell für eine Beschreibung dieses zweidimensionalen Elektronensystems ist der Einschluss eines Ladungsträgers im unendlich hohen Potentialtopf. Die analytische Lösung der Schrödingergleichung führt zu den Energieeigenwerten und den zugehörigen Wellenfunktionen der Ladungsträger. Es gilt:

$$E_n = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left(\frac{\pi}{d_{QW}} \right)^2 n^2, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.19)$$

Sowohl die Energieeigenwerte als auch die zugehörigen Wellenfunktionen sind in Abbildung 2.7b für einen endlich hohen Potentialtopf schematisch dargestellt. Da der Quanten-

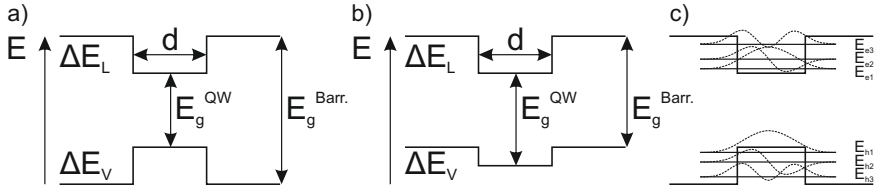


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung des Verlaufs der Valenz- bzw. Leitungsbänder in einer Doppelheterostruktur vom Typ I (a), vom Typ II (b) und Energieeigenwerte mit zugehöriger Wellenfunktionen der ersten drei Elektronen bzw. Löcher (c).

film die Bewegung der Ladungsträger nur in einer Dimension - hier in z-Richtung - einschränkt, gilt für die Ladungsträger in der x-y-Ebene die Dispersionsrelation für freie Ladungsträger. Die Gesamtenergie der Ladungsträger berechnet sich aus der Nullpunktsenergie E_0 , den Energieeigenwerten E_n und der Dispersionsrelation für freie Ladungsträger. Für die Gesamtenergie gilt:

$$E(k) = E_0 + E_n + \frac{\hbar^2}{2m_e^*} (k_x^2 + k_y^2) \quad (2.20)$$

Die Quantisierungsenergien der Löcher² werden durch analoge Überlegungen erhalten. Unendlich hohe Potentialwände können in realen Quantenfilmen auf Basis der Gruppe-III-Nitride nicht realisiert werden. Hierdurch resultiert eine nicht verschwindend kleine Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger in den Barrieren, wie dies in Abbildung 2.7c dargestellt ist. Auch die Energieeigenwerte der Ladungsträger sind daraus resultierend kleiner als im Potentialtopf mit unendlich hohen Potentialbarrieren.

2.3.3 Piezoelektrische Polarisation

In Kapitel 2.1.2 wurde bereits die spontane Polarisation der Gruppe-III-Nitride erwähnt. Durch die Abweichung des Verhältnisses von c-Gitterkonstante und a-Gitterkonstante des entsprechenden Materials vom Idealwert von $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1,633$ entsteht eine makroskopische spontane Polarisation. Es wird ersichtlich, dass auch Abweichungen des c/a -Verhältnisses aufgrund von Verspannungen des Kristalls zu einer Polarisation führen. Es wird also ein zusätzliches Dipolmoment im Kristall induziert, wenn dieser verspannt wird. Somit geht mit der spontanen Polarisation von Materialien, wie es bei den Gruppe-III-Nitriden der Fall ist, auch immer eine piezoelektrische Polarisation bei vorliegender Verfor-

² Als sogenanntes Loch wird eine gedachte positive Ladung bezeichnet, welche zur Beschreibung von fehlenden Valenzelektronen herangezogen wird.

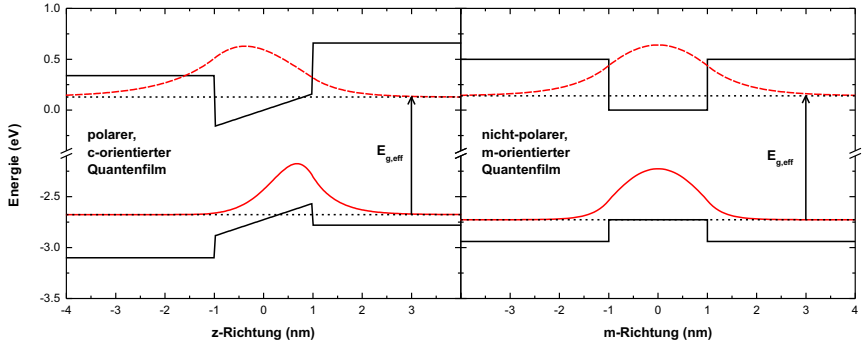


Abbildung 2.8: Simulation der Bandverläufe und Aufenthaltswahrscheinlichkeiten einer polaren c-orientierten (links) und einer nichtpolaren m-orientierten Probe (rechts) [82]. Durch das elektrische Feld ist die effektive Bandlücke des Quantenfilms herabgesetzt. Auch die Wellenfunktionen der Elektronen (rot gestrichelt) und Löcher (rot) sind räumlich getrennt. Für nichtpolare m-orientierte Quantenfilme ist dies nicht der Fall.

mung einher. Eine biaxiale Verspannung von c-planaren Quantenfilmen in der Wachstums-ebene ist unter normalen Umständen isotrop. Diese Verspannung führt zu einer Polarisierung in Wachstumsrichtung. Zur Berechnung der Polarisierung für nicht- und semi-polare Strukturen muss wieder das Koordinatensystem geschickt gewählt bzw. gedreht werden. Dies geschieht in ganz ähnlicher Weise wie in Kapitel 2.2.1 für die Verzerrung und Verspannung eines Kristalls demonstriert.

Sowohl die spontane als auch die piezoelektrische Polarisierung führen im Kristall zu extrem starken elektrischen Feldern. Die Größe des resultierenden elektrischen Feldes ist abhängig von der Gesamtpolarisation des Kristalls und kann nach

$$F_{el} = \frac{\Delta P}{\epsilon_0 \epsilon_{stat}} = \frac{P_{pz} + (P_{sp}^{QW} - P_{sp}^{Barr})}{\epsilon_0 \epsilon_{stat}} \quad (2.21)$$

berechnet werden. ϵ_0 und ϵ_{stat} sind die Dielektrizitätskonstante bzw. die Dielektrizitätszahl des Materials. Da die Differenz der spontanen Polarisierungen eines GaInN-Quantenfilms P_{sp}^{QW} und der GaN-Barrieren P_{sp}^{Barr} für kleine Indiumgehalte gering ist, hängt das elektrische Feld F_{el} innerhalb des Quantenfilms hauptsächlich von der piezoelektrischen Polarisierung P_{pz} ab.

2.3.4 Quantum Confined Stark Effect

Das in Kapitel 2.3.3 erläuterte starke interne elektrische Feld, welches auf der spontanen und der piezoelektrischen Polarisation des Kristalls beruht, beeinflusst wiederum die elektronischen und damit auch die optischen Eigenschaften der Heterostrukturen [83]. Es kommt zu einer räumlichen Trennung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Elektronen und Löchern. Dadurch wird der Überlapp der Wellenfunktionen, die Oszillatorstärke, herabgesetzt. Hierbei handelt es sich um den sogenannten *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) [15]. Die effektive Bandlücke im Quantenfilm berechnet sich neben dem Beitrag des elektrischen Feldes aus der Bandlücke des freistehenden Materials E_g , den Quantisierungsenergien der Elektronen und Löcher $E_{q,e}$ bzw. $E_{q,h}$ und der Exzitonenbindungsenergie E_X . Die effektive Bandlücke berechnet sich gemäß:

$$E_{g,eff} = E_g + E_{q,e} + E_{q,h} - E_X - e \cdot F_{el} \cdot d_{QW} \quad (2.22)$$

Wie sich aus der Gleichung schnell erkennen lässt, wird aufgrund des starken elektrischen Feldes F_{el} die effektive Bandlücke innerhalb des Quantenfilms verringert. Neben der Stärke des elektrischen Feldes spielt hier auch die Dicke des Quantenfilms d_{QW} eine zentrale Rolle. Zur Vermeidung des QCSE müssen folglich die Verspannung des Quantenfilms und die Dicke des Quantenfilms so gering wie möglich gehalten werden. Bei optisch aktiven Bauelementen wie Lasern und LEDs wird im Zusammenhang mit der Verringerung der effektiven Bandlücke von einer Rotverschiebung des emittierten Lichts gesprochen, da mit einer Verringerung der effektiven Bandlücke die Emission längerwelligeren Lichts einhergeht. Zur Veranschaulichung sind in Abbildung 2.8 die Verläufe der Valenz- und Leitungsbänder einer polaren c -orientierten (links) und nichtpolaren m -orientierten Heterostruktur (rechts) schematisch dargestellt. Ein weiterer Effekt des elektrischen Feldes ist die räumliche Trennung der Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Elektronen und Löcher. Der Überlapp der Wellenfunktionen ist somit herabgesetzt, was sich wiederum in einer reduzierten Oszillatorstärke und damit einer reduzierten Effizienz des Bauelements äußert. Alle diese Effekte müssen beim Versuch, das sogenannte „*Green-Gap*“³ zu schließen, berücksichtigt werden.

³ Vom sogenannten „*Green-Gap*“ wird im Zusammenhang mit der Problematik herabgesetzter Effizienzen von LEDs im Bereich des sichtbaren, grünen Lichts gesprochen. Laser zeigen hier stark erhöhte Schwellen für den Laser-Betrieb.

3 Experimentelle Methoden

Im folgenden Kapitel werden die verwendeten experimentellen Methoden zur Herstellung und Charakterisierung der untersuchten Proben im Detail erläutert. Die Reihenfolge der folgenden Abschnitte ist gemäß des typischen Ablaufs des Wachstums und der Charakterisierung gegliedert. Zunächst wird in Kapitel 3.1 die Methode der metallorganischen Gasphasenepitaxie vorgestellt und genauer betrachtet. Anschließend werden im Kapitel 3.2 die unterschiedlichen Verfahren zur strukturellen Charakterisierung wie die hochauflösende Röntgenbeugung (Abschnitt 3.2.1) und die Rastersondenmikroskopie (Abschnitt 3.2.2) näher erläutert.

3.1 Epitaxie

Zur Abscheidung kristalliner Schichten stehen heute verschiedene Epitaxieverfahren zur Verfügung. Die drei wichtigsten Epitaxieverfahren zur Herstellung der Gruppe-III-Nitride sind die Hydridgasphasenepitaxie (engl.: *hydride vapor phase epitaxy*, HVPE), die Molekularstrahlepitaxie (engl.: *molecular beam epitaxy*, MBE) und die metallorganische Gasphasenepitaxie (engl.: *metal organic vapor phase epitaxy*, MOVPE).

Als Ausgangsmaterial liegen bei der HVPE die Gruppe-III-Atome in metallischer Form vor. Die Gruppe-V-Atome werden dem Wachstum meist in Form von Wasserstoffverbindungen zugeführt. Als Ausgangsstoff für elementaren Stickstoff dient Ammoniak (NH_3). Die metallischen Gruppe-III-Atome - Gallium im Falle des Wachstums von Galliumnitrid - werden bei hohen Temperaturen mittels Chlorwasserstoff zu Gruppe-III-Chloriden umgesetzt. Beim Zusammentreffen der beiden gasförmigen Ausgangsstoffe im Reaktor reagieren diese wiederum bei hohen Temperaturen zu Gruppe-III-Nitriden. Mit dieser Technik lassen sich extreme Wachstumsraten von $50 \mu\text{m h}^{-1}$ bis $150 \mu\text{m h}^{-1}$ erreichen. Dies ist zwar für das Wachstum von Substraten und dicken Puffer-Schichten von großem Vorteil, jedoch sehr hinderlich, wenn es um das atomlagengenaue Abscheiden von Quantenfilmen und Heterostrukturen mit Schichtdicken im Nanometer-Bereich geht. Daher eignet sich diese Methode schlecht für die kommerzielle Herstellung von optisch aktiven Bauelementen.

Im Falle der MBE ist ein atomlagengenaues Abscheiden der einzelnen Schichten hingegen sehr gut möglich. Die verschiedenen Ausgangsmaterialien können über verschiedene

Wege angeboten werden. Anhand der unterschiedlichen Bereitstellung der Ausgangsmaterialien werden die verschiedenen Arten der MBE voneinander unterschieden. Wird der Stickstoff beispielsweise über eine Plasmaquelle angeregt und als einbaufähiger, angeregter atomarer Stickstoff zugeführt, so wird von der Plasma-unterstützten MBE (engl.: *plasma assisted molecular beam epitaxy*, PAMBE) gesprochen. Die Gruppe-III-Atome liegen am häufigsten in metallischer Form vor und werden in beheizten Tiegeln thermisch verdampft und ballistisch auf die Probenoberfläche transportiert. Aus diesem Grund ist für die Methode der MBE innerhalb der Wachstumskammer ein Ultrahochvakuum vonnöten. Liegen die Gruppe-III-Atome nicht in metallischer Form vor, sondern werden in Form von metallorganischen Verbindungen während des Wachstums bereitgestellt, so wird von der metallorganischen Molekularstrahlepitaxie (engl.: *metal organic molecular beam epitaxy*, MOMBE) gesprochen. Die schlechte Skalierbarkeit der Methode der MBE und der große technische Aufwand aufgrund des Ultrahochvakuaums machen diese Technik sehr teuer und unattraktiv für die kommerzielle Herstellung von Bauelementen auf Basis von Gruppe-III-Nitriden.

Die metallorganische Gasphasenepitaxie nutzt, genau wie die MOMBE, metallorganische Verbindungen als Ausgangsstoffe für die Gruppe-III-Atome. Als Ausgangsstoff des Stickstoffs dient im Falle der MOVPE, ähnlich der HVPE, Ammoniak. Das Verfahren der MOVPE lässt sich sehr gut hoch skalieren und ist aufgrund der moderaten technischen Anforderungen die Methode der Wahl bei der heutigen kommerziellen Herstellung von elektronischen und optoelektronischen Bauelementen. Da die in dieser Arbeit untersuchten Proben alle mittels MOVPE abgeschieden wurden, soll diese Methode im Folgenden noch einmal im Detail vorgestellt werden.

Das Wachstum der untersuchten Proben fand in einer kommerziellen Niederdruck-Horizontalreaktor¹ -Anlage des Typs AIX200RF mit Hochfrequenzheizung der Firma AIXTRON statt. Als Ausgangsstoffe für die Gruppe-III-Atome dienten Triethylgallium (TEGa) und Trimethylgallium (TMGa), Trimethylindium (TMIn) und Trimethylaluminium (TMAI). Als Stickstoffquelle wurde Ammoniak verwendet. Bei den metallorganischen Ausgangsstoffen TEGa, TMGa und TMAI handelt es sich unter Normalbedingungen um Flüssigkeiten. Allein das TMIn liegt als Feststoff vor. Die Ausgangsmaterialien werden in Edelstahlgefäßen gelagert - den sogenannten *Bubblern*.

Um die metallorganischen Verbindungen in den Reaktor zu transportieren, wird ein Trägergas eingesetzt. Als Trägergas kann für jede Quelle separat zwischen molekularem Wasserstoff und molekularem Stickstoff gewählt werden. Das Trägergas wird durch eine Leitung, die sogenannte *Diptube*, durch den gewünschten Ausgangsstoff geleitet. Auf dem Weg durch die Ausgangssubstanz reichert sich das Trägergas mit dieser an. Um die Menge an

¹Horizontal-Reaktoren werden z. B. von sogenannten „Showerhead“-Reaktoren unterschieden, bei welchen die Ausgangsmaterialien vertikal von oben auf das Substrat geleitet werden.

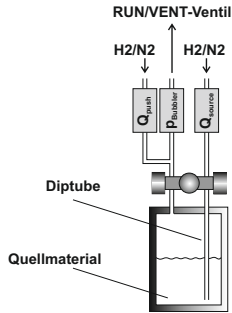


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau eines Bubblers. Über die Diptube wird das Trägergas durch das Quellmaterial geleitet. Über die MFCs werden sowohl der Push- als auch der Source-Fluss geregelt. Der Druckregler reguliert den Druck innerhalb des Bubblers.

Material zu beeinflussen, stehen verschiedene Parameter zur Verfügung. Die Menge des in den Reaktor getragenen Materials skaliert linear mit dem Trägergasfluss Q_{Source} , welcher durch den Bubbler geleitet wird. Aber auch die Temperatur des Ausgangsstoffes selbst ist von zentraler Bedeutung. Mit steigender Temperatur steigt der Dampfdruck p_{Dampf} des Materials, wodurch sich das Trägergas besser mit diesem anreichert. Als dritter Parameter steht der Druck innerhalb des Bubblers $p_{Bubbler}$ zur Verfügung. Mit sinkendem Druck erhöht sich die im Trägergas gelöste Menge an Ausgangssubstanz. Um reproduzierbare Ergebnisse zu erzielen, müssen also der Fluss des Trägergases, die Temperatur des Bubblers und der Druck innerhalb des Bubblers genauestens kontrolliert werden. Die pro Zeiteinheit in den Reaktor getragene Stoffmenge des Ausgangsstoffes n/t folgt Gleichung 3.1.

$$\frac{n}{t} = Q_{Source} \cdot \frac{p_0}{R \cdot T_0} \cdot \frac{p_{Dampf}}{(p_{Bubbler} - p_{Dampf})}. \quad (3.1)$$

p_0 , T_0 und R sind hier der Normaldruck, die Normaltemperatur und die universelle Gaskonstante.

Um den Gesamtfluss pro Bubbler auf einem festen Wert zu halten - dies sind typischerweise 500 sccm (sccm = *standard cubic centimetre per minute*) - steht ein weiterer Parameter, der Push-Fluss Q_{Push} , zur Verfügung. Dieser wird hinter dem Bubbler in die entsprechende Leitung gegeben, um den Gesamtfluss aufzufüllen. In Abbildung 3.1 ist eine schematische Darstellung eines solchen Bubblers gezeigt.

Nachdem das mit Quellmaterial angereicherte Trägergas den Bubbler verlassen hat, kann mit Hilfe des RUN/VENT-Ventils geschaltet werden, ob dieses für ein mögliches Kristallwachstum über die RUN-Leitung in den Reaktor oder direkt über die VENT-Leitung, am Reaktor vorbei in den Abgaswäscher (in Abbildung 3.2 grün gekennzeichnet) gegeben wird. Die Bubbler bilden das Gasmischkabinett (in Abbildung 3.2 blau gekennzeichnet).

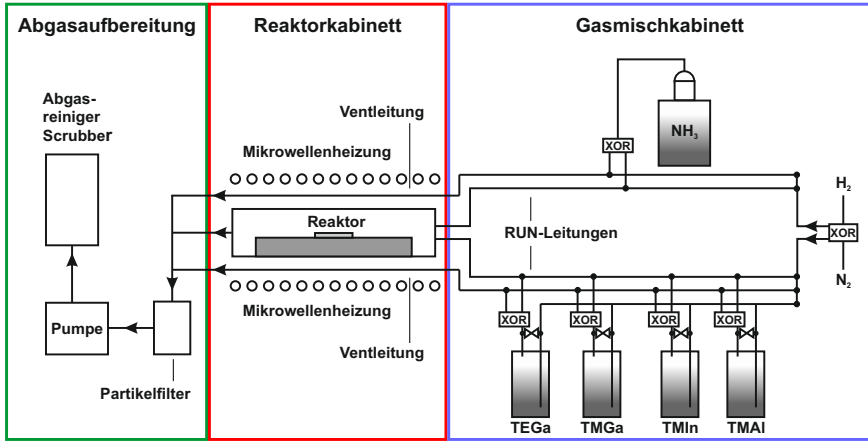


Abbildung 3.2: Vereinfachte schematische Darstellung einer MOVPE-Anlage mit Horizontalreaktor.

Das Reaktorkabinett (in Abbildung 3.2 rot gekennzeichnet) besteht aus einem doppelwandigen, wassergekühlten Quarzglasreaktor. In diesem befindet sich der *Liner*, welcher ebenfalls aus Quarzglas besteht und ein möglichst laminares Strömungsprofil über der Probe gewährleisten soll. Das Substrat selbst liegt auf einem drehbaren Teller, welcher Teil des Suszeptors ist. Beide Teile sind aus SiC beschichtetem Graphit und können über die Hochfrequenzheizung induktiv geheizt werden. Während des Wachstums wird der Teller mit Hilfe eines Gasflusses in Rotation versetzt, um ein möglichst homogenes Wachstum über die gesamte Fläche des Substrats zu gewährleisten. Die Temperaturmessung geschieht über ein im Suszeptor befindliches Thermoelement und spiegelt daher nicht die exakte, an der Oberfläche vorherrschende Temperatur wieder. Die reale Temperatur der Probenoberfläche ist geringer als die gemessene Prozesstemperatur innerhalb des Suszeptors.

Um Vorreaktionen der Ausgangssubstanzen in den Rohrleitungen zu vermeiden, werden die Ausgangsmaterialien der Gruppe-III-Atome und das Ammoniak bis zum Reaktor in getrennten Leitungen geführt. Noch im Eingang in den *Liner* werden die Gruppe-III-Ausgangsmaterialien und die Gruppe-V-Ausgangsmaterialien durch den sogenannten Separator voneinander getrennt.

Um die Zusammensetzung der Gasphase an der Wachstumsfront zu kennen, werden die einzelnen Partialdrücke p_{Partial} der Ausgangsstoffe benötigt. Diese berechnen sich nach Gleichung 3.2 in Abhängigkeit des jeweiligen Trägergasflusses Q_{Source} , dem Gesamtfluss durch den Reaktor Q_{Total} und den unterschiedlichen Drücken des Reaktors p_{Reaktor} , des *Bubblers* p_{Bubbler} und des Dampfdrucks der Quelle p_{Dampf} . Für den Partialdruck der ein-

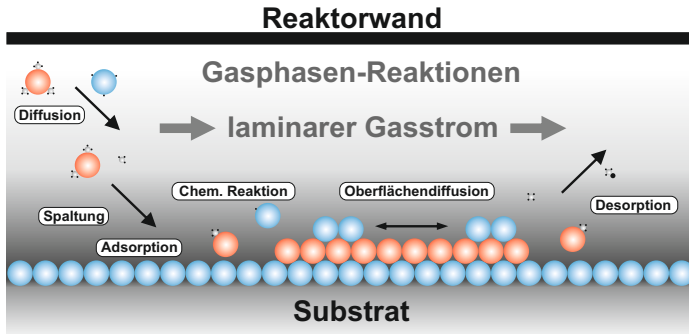


Abbildung 3.3: Auftretende Prozesse während des epitaktischen Wachstums.

zelen Ausgangsstoffe gilt somit:

$$p_{\text{Partial}} = \frac{Q_{\text{Source}}}{Q_{\text{Total}}} \cdot \frac{p_{\text{Dampf}}}{p_{\text{Bubbl}} - p_{\text{Dampf}}} \cdot p_{\text{Reaktor}} \quad (3.2)$$

Im Reaktor gelangen die Moleküle der Ausgangsstoffe durch Diffusion zur Oberfläche des Substrats. Während der Diffusion nehmen die Moleküle thermische Energie auf, welche schließlich zur thermischen Abspaltung der Methyl- bzw. Ethyl-Gruppen führen kann. Reaktionen, welche in der Gasphase ablaufen, werden "homogene Reaktionen" genannt. Reaktionen auf der Oberfläche des Substrats heißen "heterogene Reaktionen". Sind die Quellmaterialien teilweise oder vollständig zerlegt, so können sie auf der Oberfläche adsorbieren. Auf der Oberfläche der Probe kommt es zu weiteren katalytischen Reaktionen, die zur Zerlegung der Ausgangsstoffe beitragen. Aufgrund der hohen thermischen Energie der Atome werden diese nicht zwingend direkt in den Kristall eingebaut, sondern können sich auf der Oberfläche noch durch Oberflächendiffusion bewegen, bevor sie letztendlich an Stufen oder Terrassenkanten eingebaut werden. Erst durch die Oberflächendiffusion wird ein geordnetes, zweidimensionales Wachstum ermöglicht. Das Abdampfen von Atomen, Molekülen und organischen Restgruppen wird Desorption genannt und steht in Konkurrenz zum Einbau. Die Desorption einer Spezies wird maßgeblich durch ihren Dampfdruck bei der vorherrschenden Wachstumstemperatur bestimmt.

Aluminiumhaltige Verbindungen werden zur Vermeidung von TMAI-NH_3 Addukten in der Gasphase bei niedrigen Reaktordrücken abgeschieden [84]. Daher findet das Wachstum typischerweise bei Drücken von 20 mbar bis 200 mbar statt. In der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Anlage können Temperaturen von bis zu 1200 °C erreicht werden. Der Gesamtfluss aller Gase durch den Reaktor liegt typischerweise bei 6,0 slm (slm = *standard liters per minute*).

Die hier diskutierten Vorgänge sind schematisch in Abbildung 3.3 dargestellt. Für eine tiefergehende Betrachtung der möglichen Vorgänge und Reaktionen während der metall-organischen Gasphasenepitaxie von Gruppe-III-Verbindungshalbleitern sei an dieser Stelle auf das Buch von G. B. Stringfellow [85] verwiesen.

3.2 Strukturelle Charakterisierung

Neben der Abscheidung und Herstellung der Proben mit Hilfe der Technik der MOVPE stellte selbstverständlich die Charakterisierung der hergestellten Proben eine zentrale Aufgabe der hier vorgestellten Arbeit dar. Aus diesem Grund sollen im folgenden Abschnitt die verwendeten Methoden zur Charakterisierung näher beschrieben werden. Strukturelle Eigenschaften wie die kristalline Qualität und die Zusammensetzung der ternären Schichten werden mit Hilfe der hochauflösenden Röntgenbeugung (engl.: *high resolution X-ray diffraction*, HRXRD) untersucht. Die Methode der HRXRD wird in Unterabschnitt 3.2.1 näher vorgestellt.

Zur Bestimmung der Oberflächenbeschaffenheiten und -morphologien der hergestellten Proben werden mikroskopische Techniken, wie die Rastersondenmikroskopie (engl.: *atomic force microscopy*, AFM) oder die Elektronenmikroskopie herangezogen. Diese Techniken werden in den Unterabschnitten 3.2.2 und 3.2.3 kurz vorgestellt.

3.2.1 Hochauflösende Röntgenbeugung

Das Prinzip der Röntgenbeugung basiert auf der bereits im Jahr 1912 von MAX VON LAUE postulierten elastischen Streuung von monochromatischen Röntgenstrahlen an Atomen. Darauf aufbauend entwickelten WILLIAM HENRY BRAGG und WILLIAM LAWRENCE BRAGG ein Verfahren zur Strukturanalyse von Kristallen [86]. Für diese Arbeit erhielten beide im Jahr 1915 den Nobelpreis der Physik.

Am Institut für Angewandte Physik der Technischen Universität Braunschweig stehen zur Analyse der epitaktisch abgeschiedenen Schichten zwei Geräte der Firmen SEIFERT und PANALYTICAL zur Verfügung. Die Funktionsweise beider Geräte ist identisch und soll im Folgenden am Beispiel der Anlage des Typs X'PERT PRO der Firma PANALYTICAL etwas genauer beleuchtet werden.

Die Wellenlänge λ der verwendeten Röntgenstrahlung muss, um Beugung an den einzelnen Atomen beobachten zu können, in der Größenordnung der Abstände der zu untersuchenden Strukturen sein. Zur Untersuchung der Gitterabstände typischer Gruppe-III-Nitride hat sich

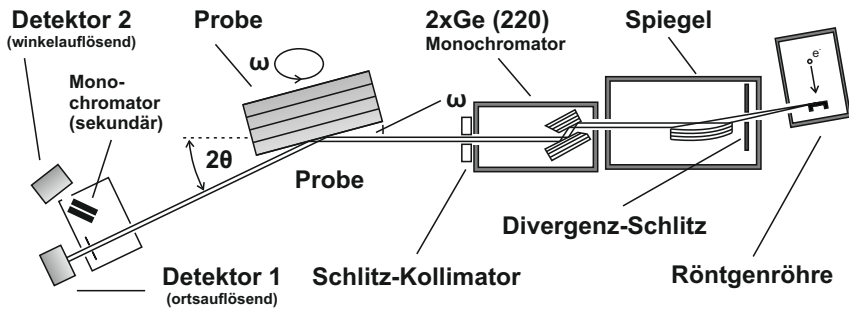
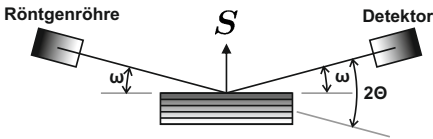


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Aufbaus der beiden verwendeten Röntgendiffraktometer.

die $K_{\alpha 1}$ -Linie des Kupfers mit einer Wellenlänge von $1,5405 \text{ \AA}$ etabliert. Um die entsprechende Röntgenstrahlung zu erzeugen, besitzt die Anlage eine Röntgenröhre auf Basis einer Kupferanode. Beschleunigte Elektronen erzeugen beim Auftreffen auf die Kupferanode neben dem kontinuierlichen Spektrum der Bremsstrahlung auch die für das Kupfer charakteristischen Röntgenlinien. Die zunächst divergente Röntgenstrahlung wird mit Hilfe eines Röntgenspiegels parallelisiert. Um monochromatische Röntgenstrahlung mit nur einer definierten Wellenlänge zu erreichen, befindet sich ein Primär-Monochromator hinter dem Spiegel. Hierbei handelt es sich um einen sogenannten „Channel-Cut“-Monochromator. Durch Mehrfach-Beugung der Röntgenstrahlen unter einem definierten Einfallswinkel an den (220)-Gitterebenen eines Germanium-Kristalls werden alle von $1,5405 \text{ \AA}$ verschiedenen Wellenlängen herausgefiltert. Anschließend trifft die monochromatische Röntgenstrahlung unter dem Einfallswinkel ω auf die Probe. Die gebeugte Röntgenstrahlung fällt dann im Winkel 2θ auf den Detektor. An der Anlage vom Typ *X'Pert PRO MRD* der Firma PANALYTICAL stehen zwei unterschiedliche Detektoren zur Verfügung - ein ortsauflösender und ein winkelauflösender Detektor. Bei dem ortsauflösenden Detektor handelt es sich um einen Detektor vom Typ PIXCEL. Dieser Detektor ist ein Liniendetektor, bestehend aus 255 einzelnen Kanälen, welcher in unterschiedlichen Betriebsmodi z. B. als offener Detektor mit einem Akzeptanzwinkel von rund $2,5^\circ$ oder als Liniendetektor genutzt werden kann. Der winkelauflösende Detektor besteht aus einem $3\text{xGe}(220)$ Sekundärmonochromator und einem Proportionalzählrohr. Durch die dreifache Beugung der einfallenden Röntgenstrahlung hat dieser Detektor einen sehr kleinen Akzeptanzwinkel. Eine schematische Darstellung eines solchen Aufbaus zur Röntgenbeugung ist in Abbildung 3.4 zu sehen.

Interferenzen der an periodischen Strukturen wie Netzebenen oder Grenzflächen gebeugten Röntgenstrahlung führen über die BRAGG-Gleichung (Gl.3.3) in Abhängigkeit vom Winkel θ zu Beugungsprofilen. Für konstruktive Interferenz gilt:

symmetrische Messung



asymmetrische Messung

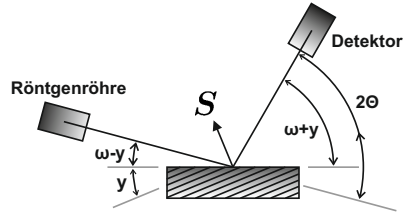


Abbildung 3.5: Unterschiedliche Symmetrien der verschiedenen Messungen. Die symmetrische Messung mit einem auf die Probenoberfläche senkrecht stehenden Beugungsvektor S (links) und die asymmetrische Messung mit einem beliebigen Beugungsvektor S (rechts).

$$2 \cdot d \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (3.3)$$

d , n und λ sind der Netzebenenabstand oder die Schichtdicke der untersuchten Struktur, die Beugungsordnung und die Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung.

In Abhängigkeit der Richtung des Beugungsvektors S bezogen auf die Oberflächennormale der untersuchten Probe werden drei Typen von Beugungssymmetrien unterschieden. Steht der Beugungsvektor während einer Messung senkrecht zur Probenoberfläche, so wird von einem symmetrischen Scan gesprochen. Steht der Beugungsvektor in einem beliebigen Winkel zur Oberfläche, welcher kleiner als neunzig Grad ist, handelt es sich um einen asymmetrischen Scan. Liegt der Beugungsvektor in der Oberfläche, wird dieser Typ von Messung „*in-plane*“-Scan² genannt. Als Spezialfall sei an dieser Stelle der Vollständigkeit halber noch der sogenannte Skew-symmetrische Scan erwähnt, bei welchem die Probe so gekippt wird, dass die Messung zwar eine symmetrische Messung ist, aber die Oberflächennormale der Probe nicht in der Ebene liegt, welche aus einfallendem und ausfallendem Röntgenstrahl aufgespannt wird.

Steht der Beugungsvektor S senkrecht zur Oberfläche, so ist die Messung sensitiv auf Strukturen, welche parallel zur Probenoberfläche in der Probe liegen. Dies sind am Beispiel einer c -orientierten Probe alle $\{0001\}$ -Netzebenen, aber natürlich auch oberflächenparallele Strukturen wie z. B. Grenzflächen und Übergitter³. Bei asymmetrischen Messungen sind diese sensitiv auf Strukturen und Netzebenen mit einem entsprechenden Winkel zur Oberfläche. *In-plane* Messungen werden zur Bestimmung der Netzebenenabstände und Größe

²„in-plane“ kommt aus dem Englischen und steht für „in der Ebene liegend“.

³Von einem Übergitter wird im Zusammenhang mit sich periodisch wiederholenden Strukturen gesprochen, welche z. B. aus zwei alternierenden Schichten unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung bestehen.

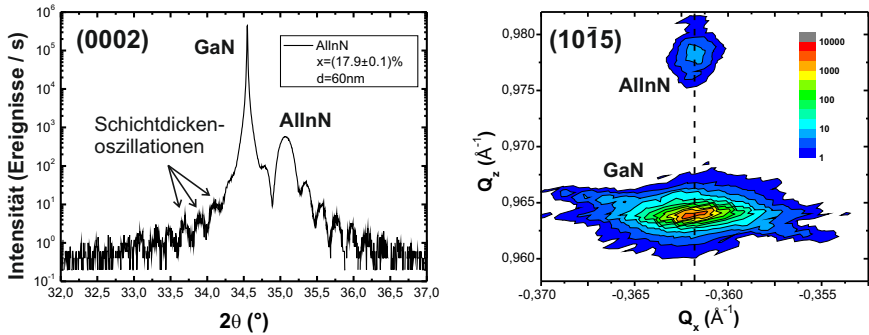


Abbildung 3.6: Exemplarische Darstellung zweier Röntgenmessungen an einer 60 nm dicken $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ -Schicht mit einem Indiumgehalt von $x \approx 18\%$. Einzelmessung am (0002)-Reflex (links) mit GaN-Peak, AlInN-Peak und Schichtdickenoszillationen und RSM am (1015)-Reflex (rechts). Die senkrechte gestrichelte Linie verdeutlicht die gleiche Q_x -Komponente der beiden Beugungsvektoren des GaN und des AlInN und somit eine identische Gitterkonstante in der Wachstumsebene.

von Strukturen herangezogen, deren Normale in der Oberfläche liegt. In diesem Fall können z. B. für eine c -orientierte Probe die a -Gitterkonstante oder der Abstand der Netzebenen in m -Richtung bestimmt werden. Zur Verdeutlichung sind die vorherrschenden Symmetrien der symmetrischen und der asymmetrischen Messung noch einmal schematisch in Abbildung 3.5 dargestellt.

Neben den zuvor vorgestellten Einzelmessungen können auch sogenannte „reziproke Gitterkarten“ (engl.: *reciprocal space maps*, RSM) aufgenommen werden. Bei einer RSM handelt es sich um eine Zwei-Achsen-Messung, welche z. B. aus einer Reihe von $\omega/2\theta$ -Messungen mit variierendem *Offset* bestehen. Die *Offset*-Werte werden mit der ω -Schrittweite verändert. Das Ergebnis einer solchen Messung wird typischerweise in „reziproken Gittereinheiten“ aufgetragen. Die einzelnen Parameter Q_x und Q_y des Beugungsvektors S werden zusammen mit der Intensität als Konturplot dargestellt. Die Parameter des Beugungsvektors S im reziproken Raum berechnen sich aus den Winkelpositionen des Goniometers und einer systemabhängigen Konstanten $R = \frac{1}{\lambda}$. Es gilt:

$$Q_x = R(\cos \omega - \cos(2\theta - \omega)) \quad (3.4)$$

$$Q_z = R(\sin \omega - \sin(2\theta - \omega)) \quad (3.5)$$

Wird eine RSM eines asymmetrischen Reflexes aufgenommen, so enthält diese gleichzeitig Informationen über Netzebenen und Strukturen sowohl in der Wachstumsebene als auch senkrecht zu dieser. Reziproke Gitterkarten symmetrischer Reflexe geben Aufschluss über Strukturen in Wachstumsrichtung und eine eventuelle Verkipfung dieser Strukturen zuein-

ander. In Abbildung 3.6 sind eine Einzelmessung am symmetrischen (0002) und die zugehörige reziproke Gitterkarte des asymmetrischen ($10\bar{1}5$)-Reflex einer AlInN-Schicht exemplarisch dargestellt. In der Einzelmessung am (0002)-Reflex (Abb. 3.6 links) sind sehr schön die beiden Peaks der GaN-Pufferschicht und des $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ zu erkennen. Aus den Schichtdickenoszillationen lässt sich die Dicke dieser AlInN-Schicht zu rund 60 nm bestimmen. Um die Zusammensetzung der Schicht bestimmen zu können, fehlt noch der Spannungszustand der Schicht. Dieser kann aus einer *in-plane* Messung bestimmt werden oder wie hier gezeigt aus der Messung einer reziproken Gitterkarte am ($10\bar{1}5$)-Reflex. Da dieser Reflex sowohl eine Komponente in Wachstumsrichtung - also [0001] - als auch in der Wachstumsebene - hier $[10\bar{1}0]$ - besitzt, können aus der RSM die *a*- und die *c*-Gitterkonstanten beider Schichten bestimmt werden. Beide Peaks liegen in der RSM direkt übereinander und besitzen daher die gleiche *x*-Komponente des Beugungsvektors. Die AlInN-Schicht hat somit die gleiche Gitterkonstante in der Wachstumsebene wie die darunter liegende GaN-Pufferschicht. Aufgrund dessen kann in diesem Beispiel die Zusammensetzung des $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ zu $x \approx 0,18$ berechnet werden. Es handelt sich hierbei also um eine exakt gitterangepasste AlInN-Schicht.

Neben Eigenschaften wie den Gitterkonstanten und Schichtdicken von einzelnen Schichten und komplexen Schichtstrukturen, können auch Materialparameter wie die kristalline Qualität mittels HRXRD bestimmt werden. Hierzu dienen Einzelachsenmessungen der ω -Achse mit offenem Detektor⁴. Diese Art der Messung wird auch *Rocking-Kurve* genannt. Abhängig vom Reflex hat die Halbwertsbreite des *Peaks* eine Aussage über die Länge der kohärent beugenden Bereiche in Wachstumsrichtung oder in der Wachstumsebene und die damit verbundenen Typen von Defekten. Dies betreffend sei an dieser Stelle noch einmal auf Abschnitt 2.2.2 hingewiesen.

3.2.2 Rastersondenmikroskopie

Nicht nur die kristalline Qualität der abgeschiedenen AlInN Schichten ist in dieser Arbeit von zentraler Bedeutung. Auch die Oberflächenmorphologie gibt wichtige Rückschlüsse auf die Einflüsse einzelner Wachstumsparameter während der Epitaxie. So ist die Oberflächenmorphologie eines der Kernmerkmale bei der Optimierung des Wachstumsprozesses des AlInN. Aufgrund der Wellenlänge sichtbaren Lichts ist die Auflösung optischer Mikroskope nicht ausreichend, um die mikroskopischen Strukturen wie Terrassenstufen und Löcher auf den Oberflächen der hergestellten Proben sichtbar zu machen. Um solch kleine Strukturen in der Größenordnung von wenigen Nanometern und teilweise darunter sichtbar machen zu können, bedient man sich häufig der Elektronenmikroskopie. Hierzu ist es

⁴Von einem offenen Detektor wird gesprochen, wenn dieser einen sehr großen und ungerichteten Akzeptanzwinkel in der 2θ -Achse hat. In unserem Fall beträgt die Öffnung des Akzeptanzwinkels $2,5^\circ$.

meist erforderlich, die Proben zu präparieren und oft auch in Stücke zu spalten. Die Rasterkraftmikroskopie gibt im Gegensatz dazu die Möglichkeit, die Oberfläche einer Probe ohne großen technischen Aufwand und zerstörungsfrei untersuchen zu können. Die Methode des AFM basiert auf einer Abtastung der Probenoberfläche mittels einer sehr feinen Spitze. Diese ist am Ende des sogenannten *Cantilevers* angebracht, welcher eine Art mikroskopische Blattfeder darstellt. Ein Laserstrahl wird auf der Rückseite des *Cantilevers* reflektiert und fällt anschließend auf einen Detektor in Form einer Photodiode. Mit dieser Anordnung können die Verbiegung oder auch die Schwingungsfrequenz des *Cantilevers* gemessen werden. Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten *Cantilever* haben eine Länge von 160 µm, eine Breite von 45 µm und eine Dicke von 4,6 µm. Die Spitze am Ende des *Cantilevers* hat eine tetraedrische Form, ist 10 µm bis 15 µm hoch und hat einen spezifizierten Radius von weniger als 10 nm. Die Resonanzfrequenz des *Cantilever*-Spitzen-Systems liegt typischerweise im Bereich von 240 kHz bis 380 kHz.

Es existieren verschiedene Arten der Abtastung der Oberfläche. Die einfachste Art ist der Kontaktmodus. Hier wird während der zeilenweisen Abtastung der Oberfläche die Spitze über die Oberfläche geführt und durch die Nachregelung der Höhe versucht die Kraft auf die Spitze konstant zu halten. Aus der Information der Höhenregulierung stammt dann die Information über die Höhenmodulation der Oberfläche selbst. Der mechanische Kontakt zwischen Spitze und Probe führt unweigerlich zur Veränderung der Probenoberfläche und zum Abrieb der Spitze. Aus diesem Grund wird ein AFM typischerweise im Nicht-Kontaktmodus betrieben. Bei dieser Art der Messung wird der *Cantilever* mit einer Frequenz nahe seiner Resonanzfrequenz zum Schwingen angeregt. Die Schwingungsfrequenz wird mittels der Photodiode detektiert. Wird die Spitze an die Probenoberfläche angenähert, so dämpfen auftretende Kräfte die Schwingung des *Cantilevers*. Durch mechanische Regulierung der Höhe der Spitze wird die Resonanzfrequenz des *Cantilevers* konstant gehalten. Wie im Kontaktmodus resultiert die Information über die Oberflächenbeschaffenheit aus der Höhenregulierung der Spitze. Durch den fehlenden mechanischen Kontakt zwischen Probe und Messspitze ist diese Methode sowohl für die Proben als auch für die Spitze wesentlich schonender als der Kontaktmodus.

Mit Hilfe der Rasterkraftmikroskopie ist es ohne Weiteres möglich, Stufen mit einer Höhe von einer einzelnen Gitterkonstante und weniger aufzulösen. Da die in dieser Arbeit verwendeten Spitzen einen Radius von typischerweise 10 nm haben, ist die laterale Auflösung des AFM auf Strukturen dieser Größenordnung beschränkt. Die aufgenommenen AFM-Bilder sind quadratisch und haben typischerweise Ausdehnungen von 0,5 µm bis zu 10,0 µm Seitenlänge. In Abbildung 3.7 ist der Aufbau eines AFM schematisch gezeigt.

Zur Charakterisierung der Oberflächenmorphologie der hergestellten Proben steht im Institut ein AFM des Typs DUALSCOPE der Firma DME zur Verfügung.

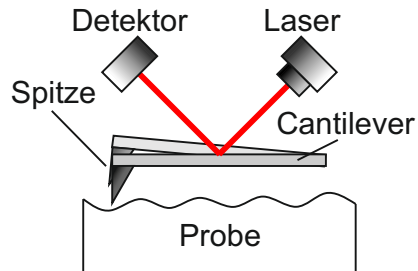


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Anordnung von Probe, Spitze, *Cantilever*, Laser und Detektor in einem AFM.

3.2.3 Elektronenmikroskopie

Zusätzlich wurden die Proben mittels verschiedener Techniken der Elektronenmikroskopie charakterisiert. So kann z. B. die Oberflächenmorphologie mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie (REM) untersucht werden. Mit dieser Methode ist es möglich größere Strukturen mit Mikrometer Ausdehnungen zu untersuchen oder z. B. in sogenannten „*Cross-Section*“-Bildern die Dicken einzelner Schichten grob zu bestimmen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein REM des Typs JSM5600 der Firma JEOL eingesetzt.

Geht es darum, Strukturen im Bereich von Atomabständen aufzulösen, so ist die Auflösung des REM nicht länger ausreichend. Um z. B. die nur wenige Atomlagen dicken GaInN-Quantenfilme einer GaInN/GaN-Heterostruktur aufzulösen, wird daher die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) herangezogen. In hochauflösenden TEM-Untersuchungen können so z. B. die Qualität der abgeschiedenen Strukturen und der Grenz- und Oberflächen untersucht werden. Es können aber auch Defekte wie z. B. die zuvor erwähnten Stapelfehler und Durchstoßversetzungen charakterisiert werden. Mittels der Technik der Rastertransmissionselektronenmikroskopie (engl.: *scanning transmission electron microscopy*, S-TEM) kann sogar die chemische Zusammensetzung von einzelnen Schichten ermittelt werden.

Da die tiefergehende Beschreibung der unterschiedlichen Methoden der Elektronenmikroskopie den Rahmen dieses Kapitels sprengen würde und im Folgenden auch eine eher untergeordnete Rolle spielen wird, soll hierauf an dieser Stelle verzichtet werden.

4 Polares AlInN auf c-orientiertem GaN

In der Einleitung wurde bereits das Problem des sogenannten „*Green Gap*“ eingeführt. Um diese Lücke in den verfügbaren Wellenlängen kommerziell hergestellter LEDs und Laser zu schließen, bedarf es GaInN-Schichten in den optisch aktiven Bereichen von Lichtemittern wie LEDs und Lasern mit hohen Indiumgehalten von rund 25 % bis 30 % [87]. Da GaInN jedoch thermisch nicht sehr stabil ist [88], bereiten Wachstumsschritte bei hohen Temperaturen im Anschluss an das Wachstum der aktiven Zone große Probleme. Hochtemperaturwachstumsschritte sind jedoch für eine gute Materialqualität der p-dotierten und meist AlGaIn-basierten Bereiche unabdingbar. Des Weiteren führen die während der Heteroepitaxie von GaInN-Schichten auf GaN-Pufferschichten oder -Substraten immer auftretenden Verspannungen zu einer großen Verspannungsenergie, welche zur Generierung von Defekten in der aktiven Zone führen können. Diese Defekte können wiederum als nichtstrahlende Rekombinationszentren innerhalb der optisch aktiven Bereiche dienen und verringern so die Effizienz langwelliger Lichtemitter [16]. Daher ist es nötig die Verspannungsenergie komplexer LED- und Laserstrukturen so gering wie möglich zu halten.

AlInN ist mit seinen verhältnismäßig moderaten Wachstumstemperaturen von etwa 850 °C, und der Möglichkeit der Gitteranpassung an GaN, ein geeigneter Kandidat die AlGaIn-Schichten in LED- und Laserstrukturen zu ersetzen. Eine Reduzierung der Gesamtverspannungsenergie und des thermischen Stresses für die aktive Zone in lichtemittierenden Bauelementen können so realisiert werden. Auch der optische Einschluss der Lichtwelle aufgrund des höheren Kontrasts der Brechungsindizes von gitterangepasstem AlInN und GaN, gegenüber $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ mit einem Aluminiumgehalt von bis zu 46% und GaN, kann so verbessert werden [89]. In Abb. 4.1 sind die Brechungsindexverläufe aktueller Laserstrukturen zusammen mit den simulierten Intensitätsverteilungen der optischen Welle innerhalb der Struktur dargestellt. In Abb. 4.1 a) ist zu erkennen, dass mit zunehmender Wellenlänge des emittierten Lichts eine Reduzierung der Brechungsindizes der verwendeten Materialien GaN und AlGaIn einhergeht. Durch diesen Effekt steigen die Verluste der optischen Welle in die Wellenleiter und Mantelschichten der Struktur und verringern so den Einschluss der optischen Welle in der aktiven Zone des Bauelements.

Durch Verwendung von gitterangepasstem AlInN als Mantelschichten können optische Verluste der Lichtwelle in die äußeren Schichten der Struktur verringert werden. Um die Funk-

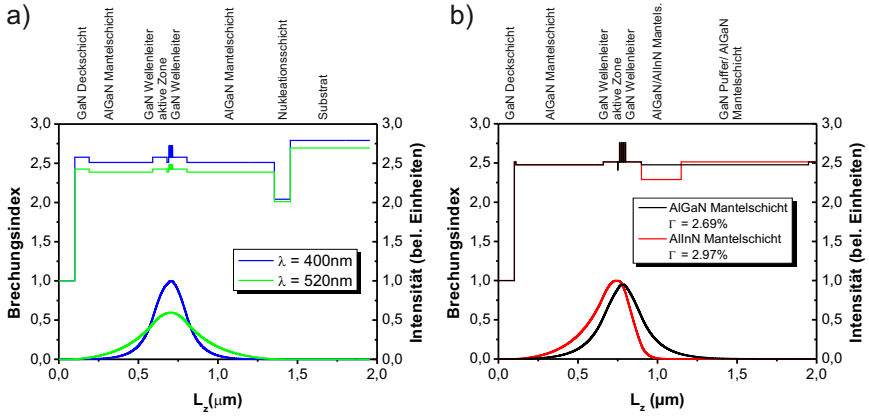


Abbildung 4.1: (a) Simulation der optischen Wellenleitung einer Laserstruktur mit AlGaIn Mantelschichten für Emissionswellenlängen von 400 nm und 520 nm. Der verringerte Kontrast der Brechungsindizes für größere Wellenlängen reduziert den optischen Einschluss. (b) Simulation der optischen Wellenleitung für zwei Laserstrukturen mit klassischer AlGaIn Mantelschicht und neuer AlInN Mantelschicht. Durch den vergrößerten Unterschied im Brechungsindex von Wellenleiter und Mantelschicht kann der Faktor des optischen Confinements verbessert werden [90].

tion nitridbasierter optoelektronischer Bauelemente mit AlInN-Mantelschichten gewährleisten zu können, sind sowohl die p- als auch die n-Dotierung der AlInN-Schichten essentiell. Undotiertes AlInN zeigt jedoch typischerweise eine n-Leitung mit Donatorkonzentrationen im Bereich von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bis $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Daher ist eine beabsichtigte p-Dotierung des AlInN nur sehr schwer zu erreichen. Für die Gruppe-III-Nitride, AlN, GaN und InN dient typischerweise Magnesium (Mg) als Dotierstoff für die p-Leitung [4, 91–93]. Obwohl Mg-dotiertes AlInN bereits als Mantelschicht oder Elektronenbarriere eingesetzt wurde [94, 95], sind Berichte über p-leitendes AlInN bisher eher die Ausnahme [96].

In Abb. 4.1 b) sind die Auswirkungen einer unteren AlInN-basierten Mantelschicht auf den Verlauf der Intensität der optischen Welle gezeigt. Die Simulation zeigt den Verlauf für ein asymmetrisches Paar von Mantelschichten, da wie weiter oben beschrieben die p-Dotierung des AlInN nur sehr schwer zu erreichen ist. Der Wert für den optischen Einschluss der Lichtwelle Γ kann so von einem Wert von 2,69% für zwei symmetrisch angeordnete AlGaIn-basierte Mantelschichten auf einen Wert von 2,97% verbessert werden. Es ist jedoch auch zu erkennen, dass die Verwendung asymmetrischer Mantelschichten eine Verschiebung des Intensitätsmaximums aus der optisch aktiven Zone bewirkt. Daher ist auch bei Verwendung nur einer n-leitenden, AlInN-basierten Mantelschicht ein Neudesign der oberen, p-leitenden Mantelschicht vonnöten.

Ziel der Arbeiten zum folgenden Kapitel waren die Findung und Optimierung der Wachstumsparameter von *a*-gitterangepasstem und *c*-orientiertem AlInN für die spätere Realisierung von gitterangepassten Mantelschichten für langwellige Lichtemitter. Als Unterbau bzw. Substrat wurden zum einen rund 2 µm dicke GaN-Pufferschichten auf α -Al₂O₃-Substraten (Saphir-Substraten), zum anderen freistehende GaN-Pseudosubstrate mit *c*-Orientierung der Wachstumsfläche verwendet.

4.1 Wachstum von gitterangepasstem AlInN auf GaN-Pufferschichten

Bei der Abscheidung der ternären Gruppe-III-Verbindung Al_{1-x}In_xN existieren zahlreiche Wachstumsparameter, welche Einfluss auf die Qualität und Zusammensetzung der abgeschiedenen Schichten haben. Ein großer Teil der im Labor stattgefundenen Arbeit war eine systematische Untersuchung der Einflüsse einzelner Wachstumsparameter auf die kristalline Qualität und die Oberflächenmorphologie des AlInN. Im Folgenden werden die wichtigsten Wachstumsparameter und ihre jeweiligen Einflüsse z. B. auf die Materialqualität oder die Oberflächenmorphologie vorgestellt.

Einer der wichtigsten Wachstumsparameter im Zusammenhang mit der Abscheidung der Gruppe-III-Nitride mittels MOVPE ist die Wachstumstemperatur. Für binäre Materialsysteme ist immer die höchstmögliche Temperatur zur Abscheidung ratsam, bei welcher das Material noch ausreichend stabil ist. Um die größtmögliche Mobilität adsorbierter Atome zu gewährleisten und damit eine hohe laterale Wachstumsrate zu erreichen, ist es nötig, den einbaufähigen Atomen eine möglichst große thermische Energie zur Verfügung zu stellen. Die unterschiedlichen Gruppe-III-Elemente besitzen im Kristallverbund unterschiedlich starke Bindungsenergien zum Stickstoff und unterscheiden sich daher in ihren physikalischen Eigenschaften. So werden z. B. die Desorptionstemperaturen der einzelnen Spezies durch die Bindungsenergie der Gruppe-III-Atome zum Stickstoff bestimmt und nehmen vom InN über das GaN bis hin zum AlN zu [97]. Daher besitzen die unterschiedlichen Gruppe-III-Atome bei gleicher Temperatur unterschiedliche Oberflächenmobilitäten der an der Oberfläche adsorbierten Atome. Aus diesem Grund ist es für ternäre Materialsysteme immer nötig einen Kompromiss in der Wachstumstemperatur einzugehen. Zum einen muss die Temperatur ausreichend hoch gewählt werden, um die größtmögliche Oberflächenmobilität adsorbierter Moleküle zu gewährleisten, zum anderen muss die Desorption der schwächer gebundenen Spezies bei zu hohen Temperaturen vermieden werden. Daraus resultierend sind die Zusammensetzungen ternärer und quaternärer Gruppe-III-Verbindungen bei gleichbleibender Zusammensetzung der Gasphase oft stark temperaturabhängig. Für das Materialsystem Ga_xIn_{1-x}N ist die starke Temperaturabhängigkeit des Indiumeinbaus seit langem hinlänglich bekannt [98–100]. Auch für das Materialsystem Al_{1-x}In_xN fanden

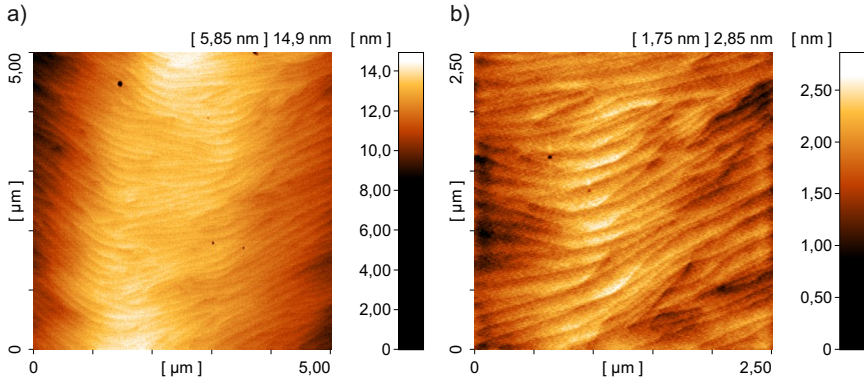


Abbildung 4.2: Oberfläche einer undotierten GaN-Pufferschicht. Die RMS-Rauheit der Oberfläche im $(2,5 \times 2,5)\mu\text{m}^2$ großen AFM-Bild beträgt 0,3 nm. Die Zahlenwerte über den jeweiligen Aufnahmen entsprechen den Werten für die gesamte Höhenskala vom tiefsten zum höchsten Punkt (nicht in Klammern) und der farblich dargestellten Höhenskala von Schwarz bis Weiß (in eckigen Klammern).

Schenk *et al.* eine starke Temperaturabhängigkeit des Indiumeinbaus. Es wurde ein thermisch aktivierter Prozess mit einer Aktivierungsenergie von $(1,05 \pm 0,05)$ eV ausgemacht, welcher mit dem Einbau von Indium konkurrieren soll [101]. Eine explizite Identifizierung dieses Prozesses wurde jedoch nicht erreicht.

Um ein Gefühl dafür zu bekommen, welche Unterschiede und Gemeinsamkeiten zwischen den Oberflächen der AlInN-Schichten und den Oberflächen der darunter liegenden GaN-Pufferschichten bestehen, sind in Abb. 4.2 zwei AFM-Bilder der Größen $(5 \times 5)\mu\text{m}^2$ und $(2,5 \times 2,5)\mu\text{m}^2$ einer undotierten GaN-Pufferschicht dargestellt. Die Oberfläche der GaN-Pufferschichten, auf welchen die Schichten aus dem folgenden Abschnitt alle abgeschieden wurden, zeichnen sich durch eine klar definierte Terrassen- und Stufenstruktur aus. Die RMS-Rauheit im Falle des $(2,5 \times 2,5)\mu\text{m}^2$ AFM-Bildes beträgt gerade einmal 0,3 nm.

4.1.1 Einfluss der Wachstumstemperatur auf die Zusammensetzung des AlInN

Die im folgenden Abschnitt diskutierten Proben bestehen aus rund 46 nm dicken AlInN-Einzelschichten auf ungefähr 2,0 μm dicken GaN-Pufferschichten auf $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ Substraten. Die Quellflüsse der einzelnen Ausgangssubstanzen sind: $Q_{\text{TMIIn}} \approx 21,7 \mu\text{mol/min}$, $Q_{\text{TMAI}} \approx 12,2 \mu\text{mol/min}$ und $Q_{\text{NH}_3} \approx 89,2 \text{ mmol/min}$. Daraus resultierend ergeben sich die Zusammensetzung der Gasphase, also der relative Indiumgehalt im Reaktor, und das V/III-Verhältnis

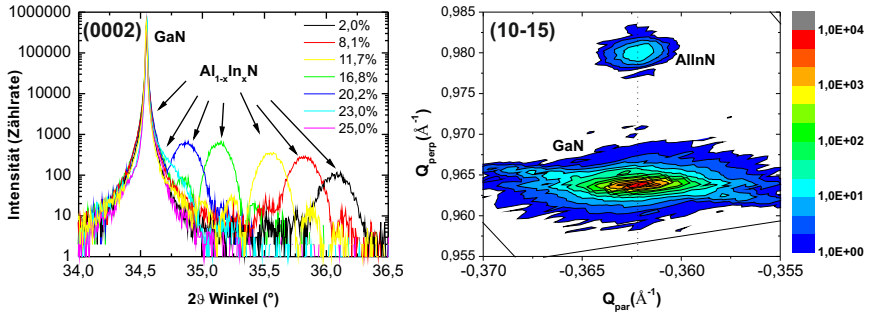
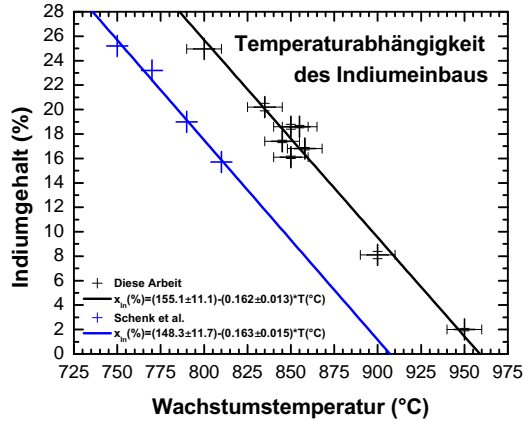


Abbildung 4.3: Temperaturserie von unter Standardbedingungen (siehe Text) gewachsenen AlInN-Schichten. Links: XRD-Untersuchungen am (0002)-Reflex zeigen eine zunehmende c -Gitterkonstante mit steigendem Indiumgehalt. Rechts: Exemplarische RSM einer voll verspannten AlInN-Schicht am Beispiel des (10 $\bar{1}$ 5)-Reflex einer der Probe mit einem Indiumgehalt von 16,8 %.

zu: $x_{\text{Gas}} = 0,64$ und $V/III \approx 2600$. Das Wachstum befindet sich somit in einem Regime der Indiumübersättigung. Um Vorreaktionen der Ausgangssubstanzen in der Gasphase zu vermeiden, wird der Reaktordruck mit einem Wert von $p = 20 \text{ hPa}$ recht niedrig gewählt. Diese Wachstumsbedingungen werden im Folgenden „Standardbedingungen“ genannt.

In Abbildung 4.3 sind links die symmetrischen XRD-Profile am (0002)-Reflex einiger AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Indiumgehalten im Bereich von 2,0 % bis 25,0 % dargestellt. Mit steigendem Indiumgehalt nimmt die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung - also die c -Gitterkonstante - zu. Aufgrund der unterschiedlichen c/a -Verhältnisse der binären Gruppe-III-Nitride liegen der (0002)-Reflex von a -gitterangepasstem Al_{1-x}In_xN mit einem Indiumgehalt von 18 % und der des GaN nicht beim gleichen Winkel. Eine Anpassung der freistehenden c -Gitterkonstante von Al_{1-x}In_xN an die c -Gitterkonstante des GaN liegt bei einem Indiumgehalt von rund 27% vor. Aufgrund der kompressiven Verspannung des Al_{1-x}In_xN mit Indiumgehalten über 18% und der damit einhergehenden tensilen Streckung der Einheitszelle in c -Richtung liegen die beiden Peaks des Al_{1-x}In_xN und des GaN bereits bei einem Indiumgehalt von rund 23% nahezu aufeinander. Allein aus XRD-Messungen symmetrischer Reflexe lässt sich aufgrund der fehlenden Information über die Gitterkonstante in der Wachstumsebene - also den Verspannungszustand - keine Zusammensetzung der Al_{1-x}In_xN-Schichten bestimmen. Hierzu werden zusätzlich reziproke Gitterkarten an den asymmetrischen {10 $\bar{1}$ 5}-Reflexen gemessen. Eine solche RSM ist exemplarisch in Abb. 4.3 rechts dargestellt. Im Falle des (10 $\bar{1}$ 5)-Reflexes handelt es sich um eine Linearkombination aus den Richtungen [10 $\bar{1}$ 0] und [0001]. Daher sind die einzelnen Komponenten dieser reziproken Gitterkarte Q_{par} und Q_{perp} ein Maß für die Gitterkonstanten in m - bzw. c -Richtung des Kristalls. Zusätzlich werden noch die in Kapitel 3.2.1 vorgestellten *in*-

Abbildung 4.4: Eigene Daten (schwarze Quadrate) und Datenpunkte von Schenk et al. (blaue Quadrate, Ref. [101]) zusammen mit den entsprechenden linearen Anpassungen. Die Steigungen beider Ausgleichsgeraden sind nahezu identisch. Zu berücksichtigen ist hierbei, dass es sich bei den von Schenk *et al.* gemessenen Temperaturen um Daten aus Messungen mittels optischer Pyrometrie handelt. Bei den von uns gemessenen Temperaturen handelt es sich um unkorrigierte Werte des Thermoelements innerhalb des Suszeptors. [102]



plane-Scans am (10 $\bar{1}$ 0)-Reflex gemessen. Aus allen diesen Messungen sind anschließend die einzelnen Netzebenenabstände und Verspannungszustände der Al_{1-x}In_xN-Schichten in den unterschiedlichen Richtungen hinreichend genau bekannt. Auf dieser Basis können die freistehenden Gitterkonstanten des Materials berechnet werden, woraus sich mit Hilfe der Regel von Vegard die Zusammensetzung der ternären AlInN-Schichten bestimmen lässt.

In Abbildung 4.4 sind die resultierenden Indiumgehalte von AlInN-Schichten unter den zuvor genannten Wachstumsbedingungen in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur (schwarze Kreuze) zusammen mit einer Temperaturserie von AlInN-Proben von Schenk *et al.* aus [101] (blaue Kreuze) dargestellt. Bei den zugehörigen Geraden handelt es sich um lineare Regressionen der jeweiligen Datenpunkte. Beide Einbaukurven haben mit Werten von $(-0,162 \pm 0,013) \% ^{\circ}\text{C}^{-1}$ und $(-0,163 \pm 0,015) \% ^{\circ}\text{C}^{-1}$ nahezu identische Steigungen. Der Indiumeinbau erweist sich über einen weiten Temperaturbereich von 800 °C bis 950 °C als sehr linear. Die Abnahme des Indiumgehalts mit steigender Wachstumstemperatur liegt in der gesteigerten Desorption des Indiums begründet. Der Dampfdruck von Indium liegt bei einer Temperatur von 850 °C bzw. 1123,15 K bei 0,282 Pa [103]. Der Dampfdruck der Aluminiumatome ist bei gleicher Wachstumstemperatur rund drei Größenordnungen geringer und hat einen Wert von nur $3,04 \times 10^{-4}$ Pa [103]. Der Unterschied der beiden Dampfdrücke von Indium und Aluminium steigt zusätzlich mit zunehmender Temperatur (siehe Abb. 4.5). Daher nimmt der Indiumgehalt des abgeschiedenen Kristalls mit steigender Temperatur ab.

Die in diesem Bereich der Wachstumstemperatur abgedeckten Zusammensetzungen des Al_{1-x}In_xN reichen von $x = 2,0 \%$ bis $25,0 \%$. Da die Proben von Schenk *et al.* mit einem

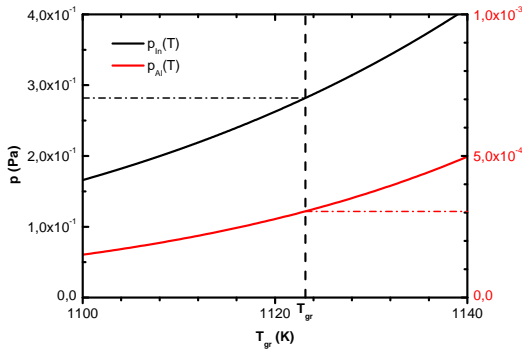


Abbildung 4.5: Verläufe der Dampfdruckkurven für Indium- bzw. Aluminiumatome nach [103]. Der Dampfdruck von Aluminium ist bei einer Wachstumstemperatur von 850 °C (1123,15 K) mit einem Wert von $3,04 \times 10^{-4}$ Pa rund drei Größenordnungen kleiner als der Dampfdruck des Indiums (0,282 Pa).

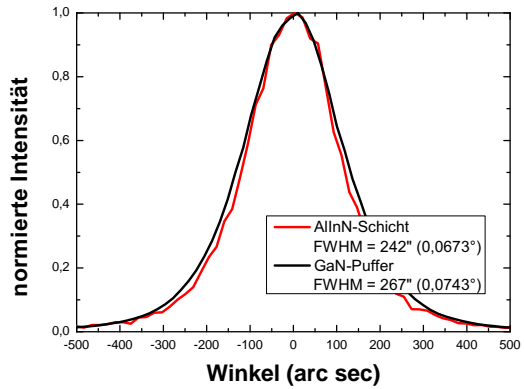
Indiumgehalt von rund 86% in der Gasphase auch im Regime der Indiumübersättigung hergestellt wurden, sind die Wachstumsbedingungen beider Serien vergleichbar.

Die Diskrepanz der Wachstumstemperaturen für ähnliche Indiumgehalte lässt sich über die verschiedenen Verfahren zur Temperaturmessung erklären. Schenk *et al.* messen die Temperatur während des Wachstumsprozesses über das Verfahren der optischen Pyrometrie, welche ein sehr gutes Maß für die reale Oberflächentemperatur der Probe selbst ist. Im Falle der in Braunschweig hergestellten Proben handelt es sich um unkorrigierte Messwerte eines Thermoelements innerhalb des Suszeptors. Da sich die Probe auf einem Drehteller befindet, welcher von unten durch einen Gasfluss in Rotation versetzt wird, haben sowohl der Teller als auch die Probe eine niedrigere Temperatur, als sie im Inneren des Suszeptors gemessen wird. Die Wachstumstemperatur für gitterangepasstes $\text{Al}_{1-x}\text{In}_x\text{N}$ auf c-orientiertem GaN mit 18 % Indium kann mit Hilfe der Einbaukurve zu $T_{\text{angepasst}} \approx 852^\circ\text{C}$ bestimmt werden.

Der Fehler des Indiumgehalts einzelner Proben lässt sich aufgrund der Fehler bei der Bestimmung der Netzebenenabstände zu rund einem Prozent abschätzen. Auch die Temperatur unterliegt einem experimentellen Fehler. So ändert sich etwa die Temperatur des Drehtellers durch Abnutzung der Drehachse. Und auch der Tausch oder Belegungszustand anderer Teile des Reaktors wie z. B. des Quarzliners, haben einen Einfluss auf die Oberflächentemperatur der Proben. Es zeigt sich, dass die Prozesstemperatur für gitterangepasstes AlInN mit 18 % Indium für unterschiedliche Probenreihen meist zwischen 840 °C und 860 °C liegt. Daher wurde der Fehler in der Temperatur mit $\pm 10^\circ\text{C}$ abgeschätzt.

Die kristalline Qualität der Schichten wird mittels Omega-Scans, auch Rocking-Kurven genannt, ermittelt. In Abb. 4.6 sind die normierten Rocking-Kurven einer gitterangepassten AlInN-Schicht mit einem Indiumgehalt von 17,9% und einer Schichtdicke von rund 60 nm und der darunterliegenden GaN-Pufferschicht am (0002)-Reflex dargestellt. Es ist zu entnehmen, dass die Halbwertsbreite des AlInN-Peaks mit einem Wert von $242''$ nicht nur

Abbildung 4.6: Überlagerung der beiden normierten Rocking-Kurven einer gitterangepassten AlInN-Schicht mit 17,9% Indium und der darunter liegenden GaN-Pufferschicht am (0002)-Reflex. Beide Schichten haben mit Werten von $0,0673^\circ$ bzw. $0,0743^\circ$ nahezu identische Halbwertsbreiten. Die der AlInN-Schicht ist sogar geringfügig schmaler.



nahezu identisch mit der Halbwertsbreite der GaN-Pufferschicht (267'') ist, sondern tatsächlich sogar etwas geringer ausfällt. Da mögliche Verbreiterungsmechanismen wie die Krümmung der Probe oder die Divergenz des Röntgenstrahls für beide Messungen identisch sind, kann festgehalten werden, dass die kristalline Qualität der abgeschiedenen AlInN-Schichten sehr gut ist.

4.1.2 Die Wasserstoff-Indium-Antikorrelation

Für das Materialsystem GaInN wurde bereits Ende der 90er Jahre eine Antikorrelation zwischen der Einbaueffizienz von Indium und der Menge des gegenwärtigen Wasserstoffs in der Gasphase gefunden [104–106]. Erst zwölf Jahre später berechnete John E. Northrup mittels der Dichtefunktionaltheorie, dass eine Schicht von adsorbierten Indiumatomen an der Oberfläche den Einbau von Indium auf Gruppe-III-Plätzen im Kristall stabilisiert. Ist die Oberfläche hingegen durch atomaren Wasserstoff oder NH_2 -Gruppen passiviert, so ist der Einbau von Indium nicht länger energetisch bevorzugt und die Einbaueffizienz nimmt drastisch ab [107].

Dieser Effekt der Unterdrückung des Indiumeinbaus durch Wasserstoff während des Wachstums konnte im Rahmen dieser Arbeit auch für das Materialsystem AlInN gezeigt werden. Hierzu wurden Experimente mit unterschiedlichen Konzentrationen an molekularem Wasserstoff im Trägergas durchgeführt. Wie der Abbildung 4.7 zu entnehmen ist, bringt eine Verringerung des im Trägergas enthaltenen Wasserstoffs von 500 sccm auf 50 sccm eine signifikante Steigerung der Einbaueffizienz von Indium mit sich. Da der Indiumeinbau maßgeblich über die Wachstumstemperatur reguliert wird, geht mit der Erhöhung der Einbaueffizienz die Möglichkeit der Steigerung der Wachstumstemperatur einher. Bei einem Ge-

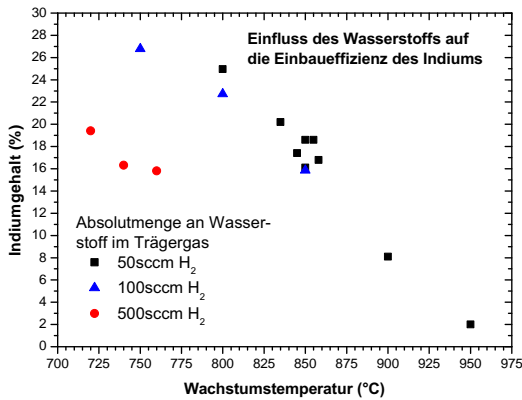


Abbildung 4.7: Einfluss des während des Wachstums präsenten Wasserstoffanteils in der Gasphase. Durch eine Verringerung der Menge an Wasserstoff von 500 sccm auf 50 sccm kann die Wachstumstemperatur für gitterangepasstes AlInN mit einem Indiumgehalt von rund 18% um rund 120 °C angehoben werden. [108]

samtfluss von 6000 sccm im Reaktor, beträgt der Wasserstoffanteil mit einem Absolutwert von 500 sccm rund 8,33 %. Unter diesen Verhältnissen wird eine gitterangepasste Zusammensetzung des AlInN mit rund 18% bei einer Temperatur von ungefähr 730 °C erreicht (siehe Abb. 4.7). Beträgt der Wasserstofffluss hingegen nur 50 sccm, so wird die Zusammensetzung der Gitteranpassung mit 18 % Indium noch bei einer Temperatur von 850 °C erreicht. Somit ergibt sich bei einer Verringerung des Wasserstoffanteils im Reaktor von 500 sccm auf 50 sccm die Möglichkeit der Steigerung der Wachstumstemperatur für gitterangepasstes Material um rund 120 °C.

Durch die Erhöhung der Wachstumstemperatur erhöhen sich die auch Diffusionslänge und die Oberflächenmobilität der adsorbierten Atome. Aufgrund dessen können sich diese besser an Stufenkanten und Terrassen anlagern. Hieraus resultieren eine gesteigerte laterale Wachstumsrate, eine Verbesserung der Oberflächenmorphologie und somit eine Verringerung der Oberflächenrauheit (vgl. hierzu Abschnitt 4.1.4). Der Einfluss der gesteigerten Wachstumstemperatur auf die Oberflächenmorphologie nahezu gitterangepasster AlInN-Schichten ist in Abb 4.8 gezeigt.

Die Probe aus Abb 4.8 a) wurde mit einem Wasserstoffanteil von 500 sccm bei einer Temperatur von 760 °C abgeschieden. Die Schichtdicke und der resultierende Indiumgehalt betragen 33 nm bzw. 15,6 %. Probe b) wurde mit einem Wasserstofffluss von 100 sccm bei einer Wachstumstemperatur von 850 °C abgeschieden. Schichtdicke und Indiumgehalt sind mit 34 nm und 15,9 % nahezu identisch zu Probe a). Der Einfluss der gesteigerten Wachstumstemperatur ist klar und deutlich erkennbar. Die Oberfläche von Probe a) wird von einer sehr feinkörnigen Struktur geprägt. Es sind keine Stufen- oder Terrassenstrukturen erkennbar. Die Oberflächenrauheit ist mit einem Wert von 2,85 nm nicht besonders gering. Im Gegensatz dazu zeichnet sich auf der Oberfläche von Probe b) eine Terrassenstruktur ab.

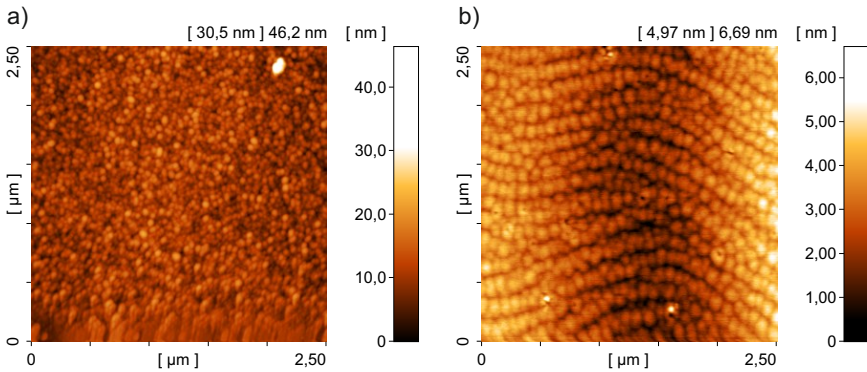


Abbildung 4.8: Einfluss der Wachstumstemperatur auf die Oberflächenmorphologie zweier nahezu gitterangepasster AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Anteilen an Wasserstoff im Trägergas der TMAI-Quelle.

Es ist zwar eine leichte Oberflächenmodulation aus rund 100 nm großen Strukturen erkennbar. Bei Linienmessungen über solche Strukturen zeigt sich, dass diese eine Höhe von rund 1 nm haben. Die RMS-Rauheit der Oberfläche von Probe b) beträgt nur noch 0,96 nm und ist damit um einen Faktor drei kleiner. Eine mögliche Erhöhung der Wachstumstemperatur von 90 °C hat somit einen signifikanten Einfluss auf die Morphologie der abgeschiedenen AlInN-Schichten.

Piner *et al.* konnten durch Experimente mit variierenden Ammoniak- und Wasserstoffflüssen eine obere Grenze von rund 0,1 % für den Anteil thermisch zerlegten Ammoniaks bei Wachstumstemperaturen von 780 °C abschätzen [106]. Auf dieser Grundlage kann das Volumen freier Wasserstoffatome in unseren Experimenten abgeschätzt werden. Der Ammoniak-Gesamtfluss beträgt unter optimierten Bedingungen für gitterangepasstes AlInN 2000 sccm. Dies entspricht bei einem molaren Volumen unter Standardbedingungen von rund 22,4 l/mol einem Ammoniak-Fluss von 89,3 mmol/min. Zusammen mit einer Zerlegungsrate von gerade einmal 0,1 % führt dies zu einem Wert für die Menge thermisch zerlegten Ammoniaks von $8,93 \times 10^{-5}$ mol/min. Da jedes Ammoniakmolekül drei Wasserstoffatome abgeben kann, führt dies zu einer Verdreifachung der Stoffmenge des Wasserstoffs. Es sollten sich also bei einer Zerlegung von rund 0,1 % des Ammoniaks rund $2,68 \times 10^{-4}$ mol/min atomaren Wasserstoffs im Reaktor befinden. Dies entspricht zusammen mit dem molaren Volumen von 22,4 l/mol einem Fluss von 6 sccm atomaren Wasserstoffs.

Da bereits bei einer Verringerung des zusätzlichen Wasserstoffs aus dem Trägergas von 100 sccm auf 50 sccm kein signifikanter Anstieg der Einbaueffizienz des Indiums mehr zu beobachten ist, kann davon ausgegangen werden, dass der aus der Zerlegung des Ammo-

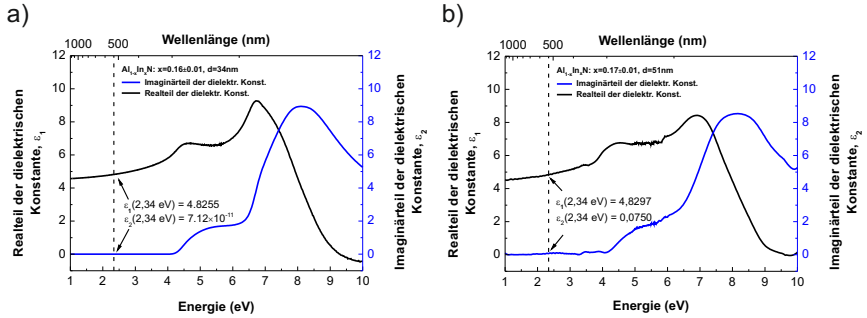


Abbildung 4.9: Real- und Imaginärteil der komplexen dielektrischen Funktion zweier nahezu gitterangepasster Proben. Die Werte für den Real- bzw. Imaginärteil bei einer Wellenlänge von 530 nm sind eingezeichnet [109].

niaks stammende Wasserstoff vernachlässigt werden kann.

Leider ist es nicht möglich, den Anteil an Wasserstoff im Trägergas während der Wachstumsexperimente auf einen Wert von Null zu reduzieren. Da sich Wasserstoff durch die Diffusion durch eine dünne Palladium-Membran sehr viel zuverlässiger und effektiver von den meisten Verunreinigungen und Fremdgasen reinigen lässt als dies für Stickstoff der Fall ist, wird die TMAI-Quelle zum Schutz vor Oxidation durch Sauerstoffverunreinigungen aus dem Trägergas nur mit Wasserstoff als Trägergas betrieben. Da es nun möglich ist, qualitativ gute und gitterangepasste AlInN-Schichten abzuschleifen, sollen im Folgenden die Untersuchungen des Brechungsindex gitterangepasster Schichten vorgestellt werden.

4.1.3 Der Brechungsindex gitterangepasster Schichten

Um den Brechungsindex nominell gitterangepasster Proben zu bestimmen, wurden einige ausgewählte Proben mittels spektroskopischer Ellipsometrie vermessen. Mit Hilfe dieses Verfahrens werden der Real- und Imaginärteil der komplexen dielektrischen Funktion des Materials bestimmt, woraus sich anschließend der Brechungsindex des Materials berechnen lässt.

Der Brechungsindex des Materials berechnet sich aus dem Realteil ϵ_1 und dem Imaginärteil ϵ_2 der dielektrischen Funktion wie folgt:

$$n = \sqrt{\frac{\sqrt{(\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2)} + \epsilon_1}{2}} \quad (4.1)$$

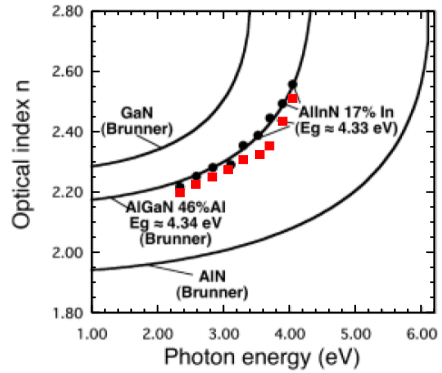


Abbildung 4.10: Überlagerung der von Carlin *et al.* vorgestellten Verläufe für die Dispersionen der Brechungsindizes von AlN, GaN, Al_{0,46}Ga_{0,54}N und Al_{0,83}In_{0,17}N (schwarze Linien/Punkte) [110] mit einer in Braunschweig hergestellten und am BESSY vermessenen Al_{1-x}In_xN-Probe mit ebenfalls einem Indiumgehalt von 17% (rote Quadrate, [109]).

In Abb. 4.9 sind die Ergebnisse der Messungen an zwei nahezu gitterangepassten Proben mit Indiumgehalten von 16 % und 17 % gezeigt. Für die Probe a) aus Abb. 4.9 wurden der Indiumgehalt und die Schichtdicke mittels HRXRD zu rund 16% bzw. 34 nm bestimmt. Der Realteil der dielektrischen Funktion ϵ_1 bei einer Wellenlänge von 530 nm bzw. einer Energie der einfallenden Photonen von rund 2,34 eV beträgt $\epsilon_1 = 4,83$. Der Imaginärteil ist im Rahmen der Messgenauigkeit gleich Null. Aus diesen beiden Werten lässt sich der Brechungsindex dieser Probe nach Gl. 4.1 zu $n = 2,20$ berechnen.

Für die dickere Probe b) aus Abb. 4.9 mit einem Indiumgehalt von 17% und einer Schichtdicke von 51 nm betragen Real- und Imaginärteil $\epsilon_1 = 4,83$ und $\epsilon_2 = 0,08$. Daraus ergibt sich für den Brechungsindex des Materials bei einer Wellenlänge von 530 nm ebenfalls ein Wert von $n = 2,20$.

Carlin *et al.* verglichen in einer Veröffentlichung die Dispersion des optischen Brechungsindex einer Al_{1-x}In_xN-Probe mit einem Indiumgehalt von 17% mit den Verläufen von AlN, GaN und Al_xGa_{1-x}N mit einem Aluminiumgehalt von 46% [110]. Abb. 4.10 zeigt eine Überlagerung der Dispersionen aus der Veröffentlichung von Carlin *et al.* mit der optischen Dispersion der in Braunschweig hergestellten Probe mit einem Indiumgehalt von 17%. Hierbei ist zu erwähnen, dass die Dispersionen von Carlin *et al.* mittels Reflexionsmessungen bestimmt wurden, wohingegen der Verlauf des Brechungsindex der in Braunschweig hergestellten Probe auf den zuvor vorgestellten Messungen via spektroskopischer Ellipsometrie beruhen.

Trotz der unterschiedlichen Messmethoden decken sich die Verläufe der Dispersionen der Brechungsindizes für die zwei Al_{0,83}In_{0,17}N-Proben sehr gut. Der Kontrast im Brechungsindex zu GaN ist im Falle der in Braunschweig hergestellten Probe sogar noch etwas größer als für die Probe von Carlin *et al.* Somit konnte auch an unseren AlInN-Schichten ge-

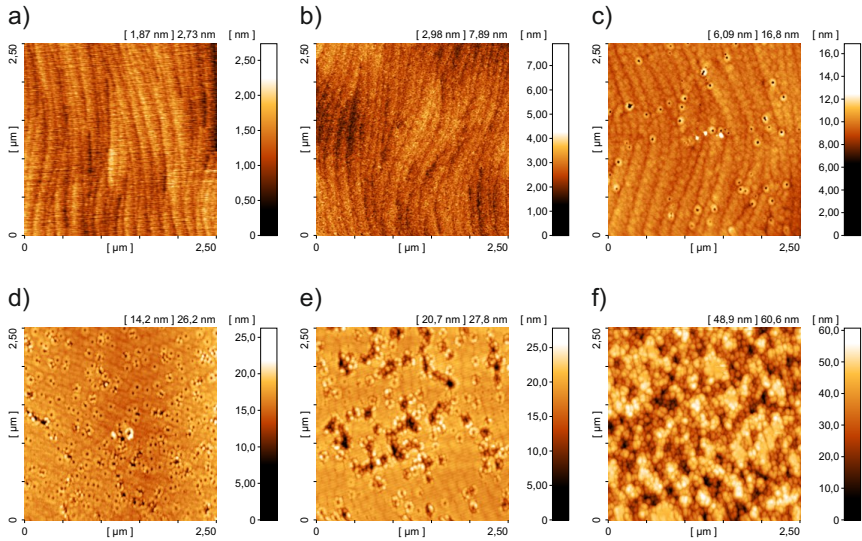


Abbildung 4.11: $(2,5 \times 2,5)\mu\text{m}^2$ AFM-Bilder nominell gitterangepasster AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken. (a) $d = 6\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 17,5\%$; $R_{\text{RMS}} = 0,3\text{ nm}$, (b) $d = 16\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 17,4\%$; $R_{\text{RMS}} = 0,4\text{ nm}$, (c) $d = 42\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 19,9\%$; $R_{\text{RMS}} = 0,6\text{ nm}$, (d) $d = 102\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 17,4\%$; $R_{\text{RMS}} = 1,6\text{ nm}$, (e) $d = 149\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 17,2\%$; $R_{\text{RMS}} = 2,7\text{ nm}$, (f) $d \approx 200\text{ nm}$; $x_{\text{In}} = 17,9\%$ und $12,9\%$; $R_{\text{RMS}} = 9,8\text{ nm}$.

zeigt werden, dass gitterangepasstes und nahezu gitterangepasstes AlInN einen gesteigerten Kontrast im Brechungsindex zu GaN mit sich bringt als die zur Zeit verwendeten AlGaIn-basierten Mantelschichten mit Aluminium-Gehalten von lediglich 10%. Der Einschluss der Lichtwelle in der optisch aktiven Zone einer Laserstruktur wird daher durch Ersetzen der AlGaIn-Mantelschichten durch AlInN-Mantelschichten gesteigert werden können.

4.1.4 Die Oberfläche und Komposition dicker c-planarer Schichten

Zur Realisierung von Mantelschichten in Laserstrukturen auf Basis von gitterangepasstem AlInN sind Schichtdicken im Bereich von rund 500 nm nötig, um einen ausreichenden optischen Einschluss der Lichtwelle bei Wellenlängen oberhalb von 500 nm zu gewährleisten [24]. Mit der Abscheidung größerer Schichtdicken von nominell gitterangepassten AlInN gehen jedoch zwei Probleme einher.

In Abb. 4.11 sind die AFM-Bilder einer Probenserie nominell gitterangepasster Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken gezeigt. In Abb. 4.11 a) ist ein $(2,5 \times 2,5)\mu\text{m}^2$

großes AFM-Bild einer Probe mit einer Schichtdicke von rund 6 nm und einem Indiumgehalt von 17,5% gezeigt. Die Oberfläche dieser Probe ist deutlich von einer Stufen- und Terrassenstruktur - ähnlich der der darunter liegenden GaN-Pufferschicht - geprägt (vergleiche hierzu Abb. 4.2). Die RMS-Rauheit entspricht mit einem Wert von $R_{\text{RMS}} = 0,3 \text{ nm}$ exakt der Rauheit der darunter liegenden GaN-Pufferschicht. Trotz Gitteranpassung raut die Oberfläche des AlInN mit zunehmender Schichtdicke auf. Die RMS-Rauheiten von 16 nm, 42 nm, 102 nm, 149 nm und $\approx 200 \text{ nm}$ dicken Schichten steigen mit der Schichtdicke monoton an und betragen 0,4 nm, 0,6 nm, 1,6 nm, 2,7 nm und 9,8 nm. In Abb. 4.11 c) und d) ist zu erkennen, dass die Oberfläche dickerer Schichten von einer körnigen Unterstruktur auf den einzelnen Terrassenflächen gebildet werden. Die kleinen Unterstrukturen haben typische Durchmesser im Bereich von 100 nm bis 150 nm und eine Höhe von rund ein bis zwei Nanometer. Diese Werte finden sich auch in der Literatur wieder [111].

Einige dieser Strukturen sind mit V-förmigen Löchern dekoriert. In Abb. 4.11 d) kann die Dichte der V-förmigen Löcher zu einem Wert von $4,8 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ bestimmt werden. Die Dichte der Durchstoßversetzungen in den GaN-Pufferschichten können mittels eines Ätzverfahrens sichtbar gemacht werden und haben typischerweise Werte von $5 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ bis $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Aufgrund der sehr viel höheren Dichte an V-förmigen Löchern im AlInN ist es unwahrscheinlich, dass diese nur durch Durchstoßversetzungen aus der GaN-Pufferschicht verursacht werden, wie es für das Materialsystem des GaInN der Fall ist. Mit zunehmender Dicke der AlInN-Schichten nimmt auch der Durchmesser der Löcher zu. Schließlich beginnen die Löcher ab Schichtdicken von rund 150 nm zu koaleszieren, wie dies in Abb. 4.11 e) zu sehen ist. Es bilden sich große, ausgedehnte Areale, in welchen die Oberflächenstruktur gänzlich verloren geht und sich tiefe Gräben und Löcher bilden. Bei Schichtdicken des AlInN ab 200 nm ist von der ursprünglichen Oberflächenmorphologie nichts mehr zu erkennen. Die gesamte Probenoberfläche wird nun durch eine sehr feinkörnige Oberfläche ohne erkennbare Struktur gebildet.

Das zweite zentrale Problem, welches neben der Aufrauung der Oberfläche mit der Abscheidung dicker, nominell gitterangepasster AlInN-Schichten einhergeht, ist eine Aufspaltung der Komposition. Überschreitet die Dicke der Schichten einen Wert im Bereich 150 nm bis 200 nm, so treten neben der angestrebten Komposition für die Gitteranpassung parasitäre Kompositionen in Erscheinung. Dieses Aufspalten der Komposition ist bei der Röntgenuntersuchung dicker AlInN-Schichten an den symmetrischen (0001)-Reflexen deutlich erkennbar.

In Abbildung 4.12 a) sind die symmetrischen Röntgenprofile am (0002)-Reflex zweier nominell gitterangepasster Schichten mit rund 60 nm und 280 nm dargestellt. Während das Röntgenprofil der dünnen Schicht einen sehr symmetrischen und klar definierten *Peak* der AlInN-Schicht mit zugehörigen Schichtdickenoszillationen zeigt, ist die Aufspaltung des

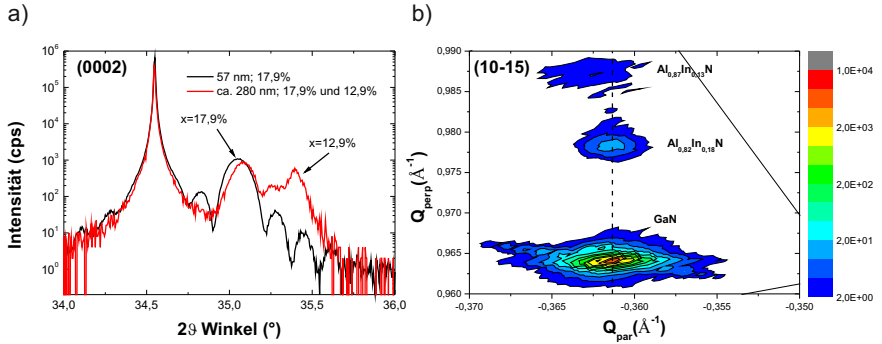


Abbildung 4.12: a) Illustration der symmetrischen (0002) Röntgenprofile zweier AlInN-Schichten mit Schichtdicken von 60 nm und 280 nm. Für die dickere der beiden Schichten ist neben der nominell angestrebten Zusammensetzung von 17,9% mindestens eine zweite Komposition mit einem Indiumgehalt von 12,9% zu sehen (rote Kurve). b) Reziproke Gitterkarte einer nominell gitterangepassten Schicht mit einer Schichtdicke von rund 280 nm am (10 $\bar{1}$ 5)-Reflex. Neben dem Peak des GaN sind zwei separate Peaks der AlInN-Schicht zu erkennen.

Peaks für die dicke Schicht deutlich zu erkennen. Bei Betrachtung der reziproken Gitterkarte am (10 $\bar{1}$ 5)-Reflex (gezeigt in Abb. 4.12 b)) fällt zudem auf, dass der Anteil der Schicht mit vermindertem Indiumgehalt gleichzeitig relaxiert und nicht länger pseudomorph aufwächst. Unter Berücksichtigung der zugehörigen a -Gitterkonstanten der beiden Anteile können die zwei Kompositionen zu 17,9 % und 12,9 % bestimmt werden.

In der Literatur finden sich zu diesem Verhalten dicker AlInN-Schichten einige unterschiedliche Erklärungsansätze. So diskutieren z. B. Chen *et al.* das Auftreten dieser parasitären Komposition als ein Aufspalten der einzelnen nahezu gitterangepassten AlInN-Schicht in zwei aufeinander folgende Unterschichten mit unterschiedlichen Kompositionen und Verspannungszuständen [25]. Dieses Verhalten soll, so Chen *et al.*, seine Ursache in den Durchstoßversetzungen aus den darunter liegenden Schichten finden. Übersteigt die Dicke der nahezu gitterangepassten Schichten einen Wert von 250 nm bis 300 nm, so bildet sich unabhängig vom absoluten Indiumgehalt der Schicht eine zweite, degradierte und teilweise relaxierte Schicht mit verringertem Indiumgehalt. Hieraus ziehen Chen *et al.* den Schluss, dass es sich bei der Degradation des nahezu gitterangepassten AlInN nicht um die konventionelle verspannungsinduzierte Degradation handeln kann, sondern um eine rein defektgetriebene Degradation aufgrund der Durchstoßversetzungen aus dem Substrat bzw. Unterbau [25]. Aus TEM-Untersuchungen kommen Chen *et al.* zu dem Ergebnis, dass die Koaleszenz der V-förmigen Löcher die Ursache für die immer ähnliche Dicke der pseudomorphen Schicht und die damit einhergehende Degradation der folgenden Schicht ist. Als Umkehrschluss

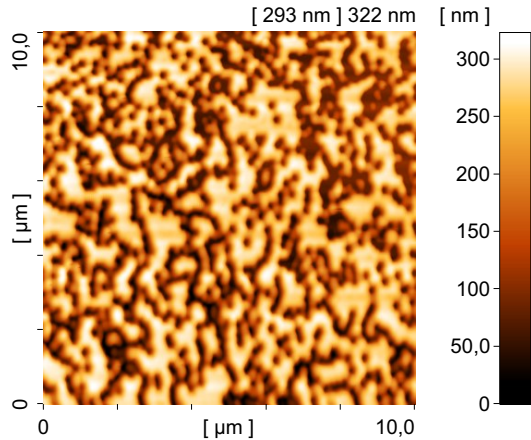


Abbildung 4.13: AFM-Aufnahme einer nominell gitterangepassten AlInN-Schicht mit einer Schichtdicke von rund 46 nm auf einer GaN-Pufferschicht, welche bewusst zur Ausbildung der V-förmigen Löcher forciert wurde.

folgen sie die Möglichkeit, dickere gitterangepasste Schichten auf Substraten und Unterbauten mit einer geringeren Dichte an Durchstoßversetzungen abscheiden zu können [25]. Auch Perillat-Merceroz *et al.* finden die Ursache für die Degradation und Kompositionsaufspaltung in der Koaleszenz der V-förmigen Löcher mit unterschiedlichem Indiumeinbau auf den Seitenflächen der V-förmigen Löcher und der c-Fläche [26].

Im Gegensatz dazu diskutieren jedoch Redondo-Cubero *et al.* und Wei *et al.* die Probleme der Kompositionsaufspaltung im Rahmen der Phasenseparation metastabiler Verbindungshalbleiter [22, 27]. Bei der spinodalen und binodalen Entmischung entstehen jedoch typischerweise aus der ursprünglichen Komposition zwei unterschiedliche Zusammensetzungen mit höherer bzw. geringerer Konzentration [112]. Da in unseren Experimenten jedoch nur eine parasitäre Komposition mit verringertem Indiumgehalt gefunden werden kann, kann nicht von einer Phasenseparation im Sinne von metastabilen III/V-Verbindungen gesprochen werden.

Um zu untersuchen, ob sich tatsächlich - wie von Perillat-Merceroz *et al.* postuliert - ein andersartiger Indiumeinbau auf den Seitenflächen der V-förmigen Löcher finden lässt, wurden nominell gitterangepasste AlInN-Schichten auf GaN-Pufferschichten mit großen V-förmigen Löchern abgeschieden.

4.2 Wachstum von c-gitterangepasstem AlInN auf {1101}-Facetten

Die V-förmigen Löcher gehören zu den meist untersuchten Defekten und sind für dünne (0001)-orientierte GaInN-Schichten und GaInN/GaN-Quantentopf Strukturen wohl bekannt

[113–115]. Die sechs Seitenfacetten der hexagonalen Löcher in diesen Strukturen werden von Flächen der $\{1\bar{1}01\}$ -Kristallebenen gebildet. Der Winkel zwischen diesen $\{1\bar{1}01\}$ -Flächen und der c-Fläche berechnet sich unter Berücksichtigung der a- bzw. c-Gitterkonstante von GaN zu ziemlich genau 62° . Daraus resultiert ein Öffnungswinkel der V-förmigen Löcher von knapp unter 60° . Da die Löcher einen festen Öffnungswinkel besitzen, ist der Durchmesser und somit bei gegebener Dichte der Löcher auch der prozentuale Flächenanteil der Löcher an der gesamten Probenoberfläche primär von der Schichtdicke abhängig. Unter bestimmten Wachstumsbedingungen, auf welche hier nicht weiter eingegangen werden soll, können auch indiumfreie GaN-Schichten dazu angeregt werden, V-förmige Löcher auszubilden.

Um den Einbau von Indium in AlInN auf den $\{1\bar{1}01\}$ -Seitenflächen der V-förmigen Löcher zu untersuchen, wurde eine nominell a-gitterangepasste AlInN-Schicht auf einer solchen GaN-Schicht abgeschieden. Rührt die in Abschnitt 4.1.4 vorgestellte Kompositionsaufspaltung tatsächlich von einem andersartigen Indiumeinbau auf den Seitenflächen der V-förmigen Löcher her, so sollte sich hier die auftretende parasitäre Komposition mit einem um 5 % verringerten Indiumgehalt schon für Schichtdicken unterhalb der kritischen Schichtdicke für die Kompositionsaufspaltung zeigen.

In Abb. 4.13 ist ein AFM-Bild der Größe $(10 \times 10) \mu\text{m}^2$ der Oberfläche einer nominell gitterangepassten c-orientierten AlInN-Schicht auf einem GaN-Puffer mit großen hexagonalen, V-förmigen Löchern dargestellt. Durch Wahl der passenden Wachstumsparameter und einer Wachstumszeit von 18 min für die GaN-Pufferschicht wurde erreicht, dass die V-förmigen Löcher einen Großteil der während des Wachstums präsenten Oberfläche ausmachen und bereits zu koaleszieren beginnen.

Die Röntgencharakterisierung am symmetrischen (0002)-Reflex ist zunächst unauffällig (siehe Abb. 4.14 a). Neben dem scharfen Peak des GaN ist der Peak des AlInN, welcher einem Indiumgehalt von rund 15,8 % entspricht, deutlich zu sehen. Das symmetrische Röntgenprofil dieser Probe unterscheidet sich nur durch das Fehlen der Schichtdickenoszillationen des AlInN-Peaks von den Profilen anderer gitterangepasster und nahezu gitterangepasster Schichten mit einer Schichtdicke von rund 50 nm. Aufgrund der sehr rauen Oberfläche dieser Probe ist das Fehlen der Schichtdickenoszillationen zu erwarten gewesen und nicht weiter überraschend. Bei Betrachtung der reziproken Gitterkarte am symmetrischen (0002)-Reflex fällt jedoch auf, dass es einen zusätzlichen, sehr breiten Peak zwischen dem des GaN und des AlInN gibt. Bei der Auswertung der zugehörigen Gitterkonstante dieses Peaks und der daraus folgenden Zusammensetzung eines ternären AlInN ergibt sich, dass es sich hierbei um AlInN mit einem Indiumgehalt von rund 22,0 % handeln muss. Der Peak dieser zusätzlichen Zusammensetzung ist in der symmetrischen Einzellinienmessung nicht zu erkennen, da er von dem sogenannten *Streak-Peak*, einem apparativ bedingten Artefakt,

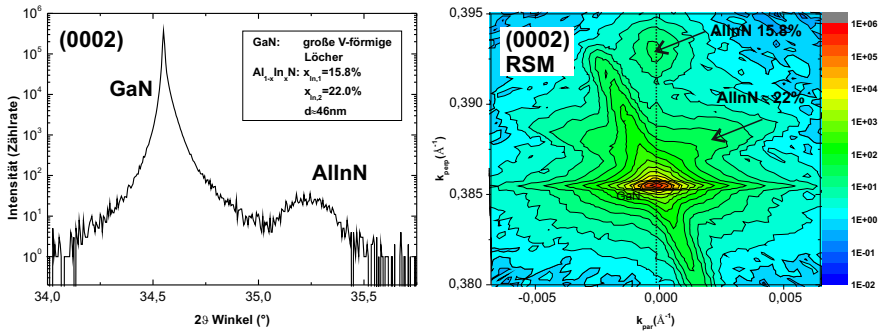


Abbildung 4.14: Einzelmessung (links) und reziproke Gitterkarte (rechts) am symmetrischen (0002)-Reflex [116]. Während die Einzelmessung keinen Hinweis auf eine parasitäre Zusammensetzung auf den Seitenflächen der Löcher im GaN gibt, zeigt die reziproke Gitterkarte einen stark verbreiterten Reflex, welcher zu einer Zusammensetzung von rund 22 % Indium gehört. Die starke Verbreiterung resultiert aus der Verkipfung des AlInN bei der Relaxation auf den semipolaren Seitenflächen.

überlagert wird. Einzig die leichte Asymmetrie des GaN-Peaks lässt vermuten, dass der Verlauf der Intensität des Peaks auf der Seite zu höheren Winkeln durch eine Überlagerung weiterer Peaks beeinflusst wird.

Da diese zusätzliche Zusammensetzung des AlInN nur in Verbindung mit der GaN-Oberfläche mit großen und sehr tiefen V-förmigen Löchern auftritt, muss es sich hierbei um AlInN handeln, welches mit einer veränderten Komposition auf den $\{1\bar{1}01\}$ -Seitenflächen der Löcher des GaN aufwächst. Bei den $\{1\bar{1}01\}$ -Seitenflächen handelt es sich um semipolare Flächen. Auf diesen geht mit der Relaxation von nicht gitterangepassten Schichten eine Verkipfung eben dieser einher. Dies wird in Kapitel 5 noch ausführlich vorgestellt und diskutiert. Die Verbreiterung in x-Richtung, also die Verbreiterung der *in-plane*-Komponente des Röntgenreflexes, kann auf eine solche Verkipfung des AlInN auf den $\{1\bar{1}01\}$ -Flächen zurückgeführt werden. Da es sechs Orientierungen dieser $\{1\bar{1}01\}$ -Ebenen gibt, stehen sich jeweils zwei Flächen gegenüber. Verkippt nun das AlInN auf jeder einzelnen Fläche in Bezug zur Oberfläche stets in die gleiche Richtung, so verkippen jeweils zwei Anteile in einem hexagonalen Loch in entgegengesetzte Richtungen. Daher ist der Peak der parasitären Komposition mit einem Indiumgehalt von 22 % nicht nur in eine Richtung verkippt, sondern elongiert sowohl zu positiven als auch zu negativen Werten für die zur Oberfläche parallele Komponente des Streuvektors. Dass es sich nicht um zwei separate Peaks handelt, liegt in der Natur der hexagonalen Löcher und den damit einhergehenden zwei weiteren Orientierungen möglicher Verkipfungen des AlInN begründet.

Unabhängig von der Verkipfung der einzelnen Anteile der AlInN-Schicht zeigt sich in die-

sem Experiment, dass auf den Seitenflächen der hexagonalen V-förmigen Löcher im besten Fall eine Komposition des AlInN mit gesteigertem Indiumgehalt aufwächst. Konkurrieren während des Wachstums also zwei Flächen, hier die $\{1\bar{1}01\}$ -Flächen der Löcher und die eigentliche c-planare Wachstumsfläche, zeigt sich ein gesteigerter Indiumeinbau auf den $\{1\bar{1}01\}$ -Seitenflächen der Löcher. Die Kompositionsaufspaltung für dicke AlInN-Schichten mit mehr als 200 nm zeigt jedoch in allen Experimenten eine parasitäre Komposition mit rund 5 % zu niedrigem Indiumgehalt. Ein gesteigerter Indiumeinbau auf den Seitenflächen der V-förmigen Löcher kann also nicht allein als Ursache für die Kompositionsaufspaltung herangezogen werden.

4.3 Wachstum von gitterangepasstem AlInN auf freistehenden GaN-Substraten

Wie in den vorhergehenden Abschnitten deutlich wurde, hängen viele Eigenschaften der abgeschiedenen Schichten von der Qualität des Unterbaus ab. So wird das AlInN z. B. stark von der Dichte der Durchstoßversetzungen beeinflusst, und viele der auftretenden Probleme im Zusammenhang mit der Abscheidung dicker Schichten werden den Durchstoßversetzungen im Unterbau zugeschrieben. Um den Einfluss der Dichte der Durchstoßversetzungen auf das Verhalten der AlInN-Schichten bezüglich Degradierung der Oberflächenmorphologie und der Kompositionsaufspaltung zu untersuchen, wurden Experimente mit nominell gitterangepassten Schichten auf freistehenden GaN-Substraten durchgeführt. Bei den verwendeten Substraten handelt es sich um sogenannte Pseudo-Substrate. Diese werden nicht wie Saphir- oder SiC-Substrate aus einem Volumenkristall geschnitten, sondern bestehen aus mehrere hundert Mikrometer dicken GaN-Schichten, welche auf Fremdsubstraten abgeschieden und anschließend von diesem abgelöst werden. Die Dichte der Durchstoßversetzungen ist im Falle der Pseudo-Substrate verglichen mit den GaN-Pufferschichten rund zwei Größenordnungen geringer. Typische Versetzungsdichten sind $5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$ für die Pseudo-GaN Substrate und $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ für die GaN-Pufferschichten auf α -Saphir Substraten.

Im Folgenden sollen die Gemeinsamkeiten und Unterschiede von gitterangepassten und nahezu gitterangepassten AlInN-Schichten auf freistehenden GaN-Pseudosubstraten mit den zuvor vorgestellten Schichten bezüglich der auftretenden Probleme dargestellt und näher erläutert werden.

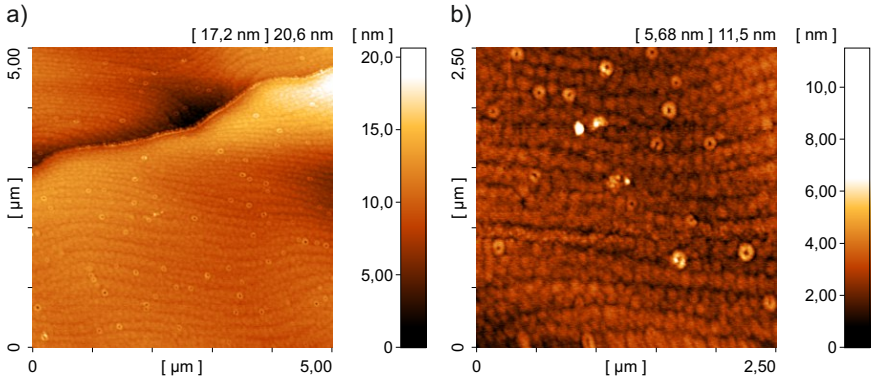


Abbildung 4.15: AFM-Bilder der Größen $(5,0 \times 5,0) \mu\text{m}^2$ (a) und $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ (b) der Oberfläche einer AlInN-Schicht abgeschieden auf GaN-Pseudosubstrat. Indiumgehalt $x = (22,9 \pm 0,1)\%$, Dicke $d \approx 47 \text{ nm}$, $R_{\text{RMS}} = 0,6 \text{ nm}$.

4.3.1 Die Oberfläche gitterangepasster Schichten auf GaN-Pseudosubstraten

Im Allgemeinen sind sich die Oberflächen der AlInN-Schichten auf GaN-Pufferschichten und GaN-Pseudosubstraten sehr ähnlich. In beiden Fällen werden die Oberflächen für Schichtdicken im Bereich von 50 nm von einer makroskopischen Stufenstruktur geprägt, auf welcher sich kleine Bereiche mit einem Durchmesser von rund 100 nm und einer Höhe von 1 nm erheben. Einige der kleinen Unterstrukturen sind auch im Falle der AlInN-Schichten auf GaN-Pseudosubstraten mit V-förmigen Löchern dekoriert.

In Abb. 4.15 sind zwei AFM-Bilder einer nominell gitterangepassten AlInN-Schicht mit einer Schichtdicke von rund 47 nm gezeigt. Die Dichte der V-förmigen Löcher lässt sich durch Auszählen zu rund $3,2 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ bestimmen. Somit ist die Dichte der V-förmigen Löcher mehr als eine Größenordnung größer, als es die Dichte der Durchstoßversetzungen des GaN-Pseudosubstrats ($1 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$) vermuten lassen würde. Es liegt nahe, dass sich die V-förmigen Löcher eben nicht nur an Durchstoßversetzungen öffnen, sondern sich auch in der AlInN-Schicht ohne eine Durchstoßversetzung bilden können. Dies berichten auch Perillat-Merceroz *et al.* und führen dies auf eine Stabilisierung semi-polarer Facetten auf der AlInN-Oberfläche während des Wachstums zurück [26]. Die RMS-Rauheit ist mit einem Wert von $R_{\text{RMS}} = 0,6 \text{ nm}$ für einen $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ großen Bereich identisch mit dem Wert der Rauheit der vergleichbaren Probe auf einer GaN-Pufferschicht aus Abb. 4.11 c).

Auch für große Schichtdicken ist das Verhalten der Oberflächenmorphologie nominell git-

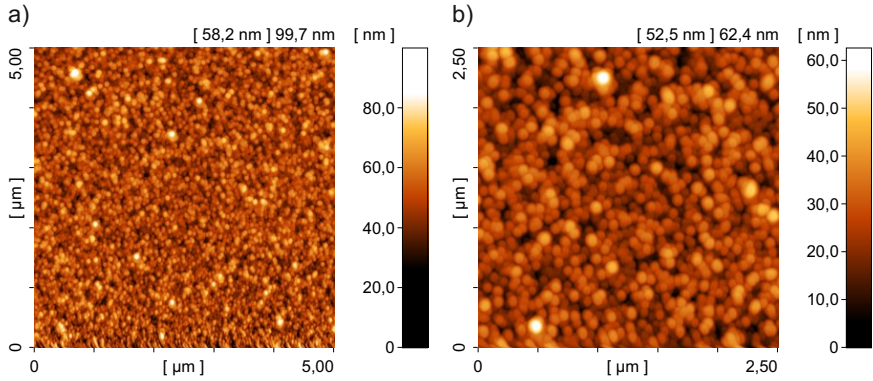
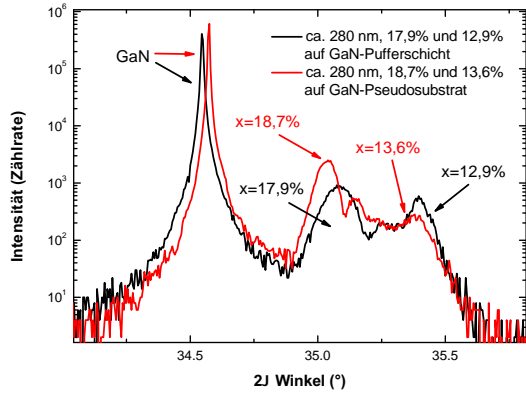


Abbildung 4.16: AFM-Bilder der Größen $(5,0 \times 5,0) \mu\text{m}^2$ (a) und $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ (b) der Oberfläche einer AlInN-Schicht abgeschieden auf GaN-Pseudosubstrat. Indiumgehalt $x_1 = (18,70 \pm 0,05) \%$, $x_2 = (13,60 \pm 0,05) \%$, Dicke $d \approx 280 \text{ nm}$.

terangepasster Schichten auf GaN-Pufferschichten und GaN-Pseudosubstraten sehr ähnlich. Überschreitet die Schichtdicke einen Wert im Bereich von 200 nm, so geht damit eine extreme Aufrauung der Oberfläche und der Verlust der Oberflächenmorphologie einher. In Abb. 4.16 sind die $(5,0 \times 5,0) \mu\text{m}^2$ (a) und $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ (b) großen AFM-Bilder einer nahezu gitterangepassten Schicht mit einer nominellen Schichtdicke von 280 nm gezeigt.

Wie zu erkennen ist, ist die Oberflächenmorphologie dieser Probe bereits völlig verloren gegangen. Die RMS-Rauheit ist mit einem Wert von $R_{\text{RMS}} = 7,4 \text{ nm}$ rund eine Größenordnung größer als die der 47 nm dicken Schicht und damit ganz ähnlich zur RMS-Rauheit der rund 200 nm dicken Probe auf einer GaN-Pufferschicht aus Abb. 4.11 f). Wäre die Degradation des AlInN tatsächlich ausschließlich von Defekten getrieben, wie es Chen *et al.* berichten [25], so müsste der Übergang von einer nahezu gitterangepassten und pseudomorph aufgewachsenen Schicht zu einer in der Komposition aufgespaltenen Schicht erst bei signifikant größeren Schichtdicken vonstatten gehen. Die Degradation der Oberfläche kann somit nicht ausschließlich auf Durchstoßversetzungen aus dem Unterbau beruhen. Wahrscheinlicher ist es, dass es sich hierbei um eine intrinsische Eigenschaft des AlInN handelt, wie es auch Perillat-Merceroz *et al.* auf Basis von TEM-Untersuchungen postulieren [26].

Abbildung 4.17: Symmetrische Röntgenprofile der (0002)-Reflexe zweier rund 280 nm dicker nominell gitterangepasster Schichten auf GaN-Pufferschicht (schwarz, [117]) und GaN-Pseudosubstrat (rot). Die parasitären Kompositionen haben in beiden Fällen rund 5 % weniger Indiumgehalt.



4.3.2 Die Kompositionsaufspaltung gitterangepasster Schichten auf GaN-Pseudosubstraten

Wie im vorhergehenden Abschnitt gezeigt wurde, unterliegen auch nominell gitterangepasste AlInN-Schichten auf freistehenden GaN-Pseudosubstraten einer extremen Aufrauung der Oberfläche mit zunehmender Schichtdicke. Trotz der um rund zwei Größenordnungen verringerten Dichte von Durchstoßversetzungen in den GaN-Pseudosubstraten gegenüber der GaN-Pufferschichten ist es nicht möglich die kritische Schichtdicke, bei welcher die Aufrauung dominant wird, signifikant zu vergrößern. Mit dieser Aufrauung geht auch hier, wie im Fall des gitterangepassten AlInN auf GaN-Pufferschichten, eine Aufspaltung der Komposition einher.

In Abb. 4.17 ist das Röntgenprofil des (0002)-Reflexes der dicken AlInN-Schicht auf GaN-Pseudosubstrat zusammen mit dem Röntgenprofil der vergleichbaren Probe auf einer GaN-Pufferschicht gezeigt. Die Tatsache, dass die Lage der beiden GaN-Peaks nicht identisch ist, liegt darin begründet, dass die GaN-Pufferschicht trotz einer Dicke von mehreren Mikrometern noch nicht vollständig relaxiert ist, wohingegen das GaN-Pseudosubstrat die freistehende Gitterkonstante von GaN aufweist. Aus der übrig gebliebenen leichten Stauchung der Einheitszelle des GaN-Puffers in der Wachstumsebene resultiert eine leichte Dehnung der Einheitszelle in Wachstumsrichtung. Daher liegt der Glanzwinkel der GaN-Pufferschicht bei kleineren Winkeln.

Nominell angestrebt war auch für diese Probe eine Komposition des AlInN entsprechend der Gitteranpassung bei einem Indiumgehalt von 17,9 %. Die Zusammensetzung des Hauptbestandteils dieser Probe liegt mit einem Indiumgehalt von 18,7 % rund 0,8 % höher als beabsichtigt. Dies wird in einer unterschiedlichen thermischen Leitfähigkeit des GaN-Substrats

gegenüber der GaN-Pufferschichten auf Saphir-Substraten begründet liegen. Eine Differenz von 0,8 % Indium zur beabsichtigten Zusammensetzung entspricht unter Berücksichtigung der temperaturabhängigen Indiumeinbaukurve einem Unterschied in der Temperatur an der Probenoberfläche von gerade einmal 4,9 °C. Auffällig hingegen ist, dass die parasitäre Komposition auch auf den GaN-Pseudosubstraten mit einem Indiumgehalt von 13,6 % nahezu exakt die gleiche Differenz zur Sollkomposition von 5,0 % aufweist, wie es für die AlInN-Schichten auf GaN-Pufferschichten der Fall ist. Beim Vergleich der Intensitätsverhältnisse der angestrebten Komposition mit der parasitären Komposition könnte es Hinweise auf eine Verschiebung der einzelnen Anteile der beiden Zusammensetzungen geben. So würde eine geringere relative Intensität der parasitären Komposition im Fall der Schicht auf GaN-Pseudosubstrat dafür sprechen, dass der Anteil mit der parasitären Komposition ein geringerer ist, als im Fall der Schicht auf einer GaN-Pufferschicht. Hierbei handelt es sich jedoch lediglich um eine Vermutung, welche mit Hilfe weiterer Untersuchungen bestätigt werden müsste.

Diese Experimente zeigen, dass durch eine Reduzierung der Dichte der Durchstoßversetzungen im Unterbau der AlInN-Schichten keine signifikante Erhöhung der realisierbaren Schichtdicke ohne eine Aufspaltung in der Komposition zu erreichen ist.

4.4 Der Indiumgehalt nominell gitterangepasster Schichten zu Beginn des Wachstums

Wie bereits vorgestellt, werden die auftretenden Probleme während der Abscheidung nominell gitterangepasster AlInN-Schichten vorhandenen Defekten, wie z. B. Durchstoßversetzungen im Unterbau, zugeschrieben. So wird beispielsweise die Entstehung der V-förmigen Löcher im AlInN auf Durchstoßversetzungen mit einem Schraubencharakter des entsprechenden *Burgers*-Vektor zurückgeführt [118]. Andere Probleme, so etwa die Aufspaltung der Komposition für große Schichtdicken und die damit einhergehende starke Aufräumung der Oberfläche nominell gitterangepasster Proben, werden als Konsequenz der Ausbildung eben der V-förmigen Löcher und deren Koaleszenz betrachtet.

Im folgenden Abschnitt wird aufgezeigt, dass es bei der Abscheidung nominell gitterangepasster Schichten bereits viel früher zu Problemen mit der Zusammensetzung der Schichten kommt. Noch bevor sich V-förmige Löcher ausbilden oder sich die Komposition der Schichten aufspaltet, ist der Einbau von Indium in die AlInN-Schichten instabil.

Um das Verhalten der Zusammensetzung sehr dünner und nominell gitterangepasster Schichten untersuchen zu können, wurden unterschiedliche Zehnfach-Übergitterstrukturen bestehend aus zehn AlInN/GaN-Schichtpaaren auf verschiedenen Pufferschichten auf α -Saphir

Abbildung 4.18: Schematischer Probenaufbau der Zehnfach-Übergitterstrukturen. Zehn Wiederholungen von AlInN/GaN-Schichtpaaren werden auf unterschiedlichen Pufferschichten bestehend aus GaN, AlGaIn oder GaInN auf Saphir-Substraten abgeschieden.

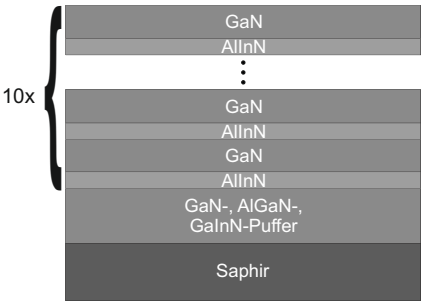


Tabelle 4.1: Wachstumsbedingungen und daraus resultierende Parameter der nominell gitterangepassten Temperaturkalibrationsprobe.

Probe	Wachstums-temperatur (°C)	Reaktor-TMAL-druck (mbar)	TMAL-Fluss ($\mu\text{mol}/\text{min}$)	TMin-Fluss ($\mu\text{mol}/\text{min}$)	NH ₃ -Fluss (mmol/min)	Dicke (nm)	In-Gehalt (%)
A	838	20	12,2	21,7	89,2	46,0	17,6

Substraten hergestellt. Die einzelnen Proben unterscheiden sich nicht nur in den Schichtdicken der AlInN-Schichten und der GaN-Schichten, sondern auch im Verhältnis der Schichtdicken von AlInN und GaN zueinander. Für eine einzelne Probe hingegen haben alle zehn Wiederholungen der AlInN/GaN-Periode den gleichen Aufbau. In Abb. 4.18 ist der Aufbau der Übergitter-Strukturen noch einmal schematisch dargestellt.

Die Wachstumsbedingungen für die AlInN-Schichten sind gemäß einer entsprechenden Referenzprobe (Probe A in Abb. 4.20) mit einer Schichtdicke von 46 nm für einen angestrebten Indiumgehalt von rund 18% gewählt. Die Wachstumsbedingungen und die sich daraus ergebenden Probenparameter der Referenzprobe sind in Tab.4.1 zusammengefasst. Zusammen mit einer Wachstumszeit von 23 min ergibt sich damit eine Wachstumsrate für das AlInN von exakt $2,0 \text{ nm min}^{-1}$.

Zur Untersuchung des Indiumeinbaus in den ersten wenigen Nanometern der Abscheidung des AlInN, wurde eine Probenserie von Übergitterstrukturen mit variierender AlInN-Schichtdicke hergestellt. Die AlInN-Schichten hatten in diesem Fall nominelle Schichtdicken zwischen 0,5 nm und 5,0 nm, welche über die bekannte Wachstumsrate und die Wachstumszeit eingestellt wurden. Die Dicke der GaN-Zwischenschichten beträgt für alle diese Proben rund 0,8 nm.

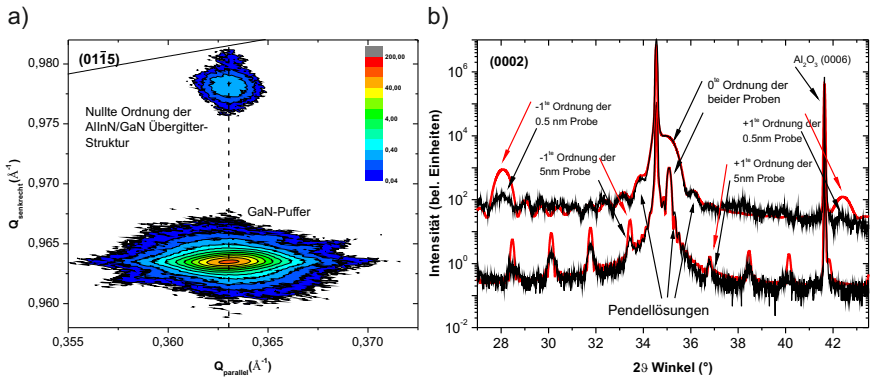


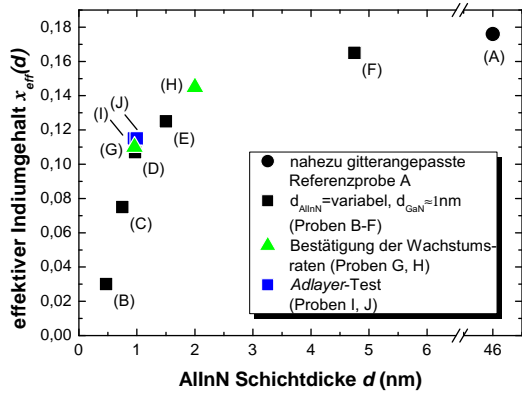
Abbildung 4.19: a) Die Zehnfach-Übergitterstrukturen wachsen pseudomorph auf den GaN-Pufferschichten. Hier am Beispiel der Probe mit rund 5,0 nm dicken AlInN-Schichten gezeigt (Probe F). b) Aus der Peaklage der nullten Ordnung der Übergitterstruktur lässt sich der effektive Indiumgehalt der AlInN/GaN-Schichtpakete bestimmen. Die Periode der AlInN/GaN-Schichtpakete wird aus dem Abstand höherer Ordnungen berechnet. [119]

Untersuchungen der Übergitterstrukturen mittels HRXRD an den asymmetrischen $(01\bar{1}5)$ - und $(0\bar{1}15)$ -Reflexen bestätigen ein pseudomorphes Wachstum der Übergitterstrukturen, selbst für die Probe mit 5,0 nm dicken AlInN-Schichten. Dies ist exemplarisch in Abb. 4.19 a) gezeigt.

Im Gegensatz zu Einzelschichten kann der Indiumgehalt der AlInN-Schichten in Übergitterstrukturen nicht direkt aus dem Verspannungszustand und den jeweiligen gemessenen Gitterkonstanten in die verschiedenen kristallographischen Richtungen bestimmt werden. Für Übergitterstrukturen kann aus der Peaklage der nullten Beugungsordnung der unterschiedlichen Reflexe lediglich die mittlere Gitterkonstante einer Periode, bestehend aus einem AlInN/GaN-Schichtpaket, ermittelt werden. Um die Konzentration der einzelnen Schichten, in diesem Fall die der AlInN-Schicht, bestimmen zu können, muss das sogenannte Tastverhältnis, also das Verhältnis der einzelnen Schichtdicken, bekannt sein. Im vorliegenden Experiment werden die Schichtdicken der beiden Schichten über die bekannten Wachstumsraten von Einzelschichten aus Vorversuchen und die entsprechenden Wachstumszeiten errechnet. Die Periode der AlInN/GaN-Schichtpaare in Wachstumsrichtung hingegen kann aus den Abständen höherer Beugungsordnungen von der nullten Beugungsordnung der symmetrischen Messungen mittels der Bragg-Bedingung sehr zuverlässig und genau bestimmt werden.

In Abb. 4.19 b) sind die symmetrischen Röntgenprofile am (0002) -Reflex zweier Übergitterstrukturen mit unterschiedlich dicken AlInN-Schichten zusammen mit den entspre-

Abbildung 4.20: Abhängigkeit des Indiumgehalts der AlInN-Schichten in AlInN/GaN-Übergitterstrukturen von der Schichtdicke des AlInN (Probe F [119]). Die Referenzprobe mit 17,6 % Indium und 46 nm Dicke (schwarzer Kreis), AlInN-Schichtdickenvariation (schwarze Quadrate), Bestimmung der Wachstumsraten (grüne Dreiecke) und *Adlayer*-Test (blaue Quadrate). Die Soll-Zusammensetzung liegt gemäß der Referenzprobe für alle AlInN-Schichten bei rund 18 %.



chenden Simulationen gezeigt. Die nominellen Schichtdicken der AlInN-Schichten beider Proben betragen 0,5 nm, respektive 5,0 nm. Zusammen mit einer Schichtdicke der GaN-Zwischenschichten von 0,8 nm handelt es sich hierbei also um zwei Proben mit Perioden von rund 1,3 nm bzw. 5,8 nm. Wie zu erkennen ist, liegen für beide Proben die nullten Ordnungen des Übergitterreflexes an ähnlicher Stelle, obwohl sich die Proben sowohl im Indiumgehalt als auch im Tastverhältnis drastisch voneinander unterscheiden. Die Abstände der Beugungsreflexe höherer Ordnungen von der Beugungsordnung nullter Ordnung hingegen sind für beide Proben aufgrund der unterschiedlichen Perioden sehr verschieden. Die Simulation der gemessenen Röntgenprofile erfolgt mit Hilfe der von der Firma PANALYTICAL vertriebenen Software „EPITAXY AND SMOOTHFIT“ [120].

Bei der Auswertung und anschließenden Auftragung der Indiumgehalte der Proben unterschiedlicher AlInN-Schichtdicken mit GaN-Zwischenschichten von rund 0,8 nm (Schwarze Quadrate, Abb. 4.20) fällt auf, dass der Indiumgehalt stark von der Schichtdicke des AlInN abhängig ist. Obwohl alle diese Schichten unter gleichen Wachstumsbedingung gemäß der gitterangepassten Referenzprobe (Probe A, Abb. 4.20) abgeschieden wurden, steigt der Indiumgehalt der AlInN-Schichten von einem Wert von rund 3,0 % für Schichtdicken von 0,5 nm (Probe B, Abb. 4.20) auf einen Wert von 16,5 % für Schichten mit einer Dicke von 5,0 nm (Probe F, Abb. 4.20).

Eine Desorption von Indium aus den AlInN-Schichten kann hierbei ausgeschlossen werden, da die GaN-Schichten bei der gleichen Wachstumstemperatur wie die AlInN-Schichten abgeschieden werden. Um zusätzlich auszuschließen, dass es sich hierbei um einen Fehler in der Bestimmung der Indiumgehalte der AlInN-Schichten durch falsch angenommene Schichtdicken der Einzelschichten auf Basis falscher Wachstumsraten handelt, wurden zwei Kreuzexperimente zur Bestimmung der Wachstumsraten dünner Schichten gemacht. Aus-

4.4 Der Indiumgehalt nominell gitterangepasster Schichten zu Beginn des Wachstums

Tabelle 4.2: Verifizierung der angenommenen Wachstumsraten. Probe G mit verdoppelter Wachstumszeit für die GaN-Schicht basierend auf Probe D. Probe H mit doppelter Wachstumszeit für das AlInN, basierend auf Probe G.

Probe	Variation, erwartete Differenz	Periode, gemessene Differenz	Schicht	Zeit (s)	Dicke (nm)	x_{In} (%)
D	Referenz	1,80 nm	AlInN	30	0,97	10,7
			GaN	150	0,82	
G	2xGaN	2,74 nm	AlInN	30	0,96	11,0
	0,82 nm	0,94 nm	GaN	300	1,73	
H	2xAlInN	3,72 nm	AlInN	60	2,00	14,5
	0,97 nm	0,98 nm	GaN	300	1,70	

gehend von Probe D mit einer Periode von 1,80 nm, welche sich gemäß der Simulation aus einer AlInN-Schicht mit 0,97 nm und einer GaN-Schicht mit 0,82 nm zusammensetzt, wurde Probe G mit doppelter Wachstumszeit des GaN abgeschieden. Daraus ergibt sich eine erwartete Differenz der beiden Perioden der Proben D und G von 0,82 nm. Als zweiter Schritt zur Verifizierung der Wachstumsrate für das AlInN wurde bei Probe H die Wachstumszeit für das AlInN von 30 s auf 60 s verdoppelt. Es wird also eine Differenz der Perioden von Probe G und H von 0,97 nm erwartet. Dies ist auch noch einmal zusammengefasst in Tabelle 4.2 dargestellt.

Die Perioden der Proben D und G unterscheiden sich letztendlich um einen Wert von 0,94 nm. Die erwartete Differenz der Perioden beträgt jedoch nur 0,82 nm. Die leichte Diskrepanz zwischen den Schichtdicken der GaN-Schichten aus Probe D und G lässt sich mit einer Veränderung der Wachstumsbedingungen innerhalb der GaN-Schichten erklären. Das AlInN-Wachstum findet bei einem Druck von 20 hPa statt. Die GaN-Zwischenschichten werden hingegen bei einem Reaktordruck von 100 hPa abgeschieden. Aus diesem Grund wird innerhalb der ersten dreißig Sekunden nach Beginn des GaN-Wachstums der Reaktordruck auf 100 hPa angehoben. Bei diesem Druck wird das GaN für eine Zeit von drei Minuten und dreißig Sekunden abgeschieden, bevor anschließend innerhalb von dreißig Sekunden der Druck wieder auf einen Wert von 20 hPa gesenkt wird. Zur Stabilisierung des Reaktordrucks vor dem nächsten AlInN-Wachstum wird noch für weitere dreißig Sekunden GaN bei 20 hPa abgeschieden. Im vorliegenden Experiment wurde die gesamte Wachstumszeit der GaN-Schichten von 150 s auf 300 s angehoben. Die Differenz der Wachstumszeiten findet jedoch vollständig bei erhöhtem Reaktordruck statt. Da mit der Erhöhung des Re-

aktordrucks während des GaN-Wachstums auch eine leichte Erhöhung der Wachstumsrate einhergeht, ist die Schichtdicke der GaN-Schichten mit verdoppelter Wachstumszeit nicht exakt verdoppelt. Da die AlInN-Schichten aber unter gleichen Bedingungen abgeschieden wurden wie in Probe D, muss die Differenz der Periode nur auf eine geänderte Schichtdicke des GaN zurückzuführen sein.

Der Indium-Gehalt der AlInN-Schichten dieser Probe kann unter dieser Annahme zu 11,0 % bestimmt werden. Er ist damit nahezu identisch mit dem Indium-Gehalt von Probe D. Bei einer Verdoppelung der Wachstumszeit des AlInN in Probe H, verglichen mit Probe G, lässt sich die erwartete Differenz der Perioden von 0,97 nm mit einem Wert von 0,98 nm exakt erfüllen. Dieses Experiment bestätigt, dass die angenommenen Schichtdicken basierend auf den bekannten Wachstumsraten und den eingestellten Wachstumszeiten für das AlInN exakt und für die GaN-Schichten hinreichend genau sind, um den Indium-Gehalt der AlInN-Schichten bestimmen zu können.

Aus dem Vergleich der Indium-Gehalte der Proben G und H (grüne Dreiecke, Abb. 4.20) mit den übrigen Übergitterstrukturen der Probenreihe B bis F können zwei Aussagen getroffen werden:

- Die Schichtdicke der GaN-Zwischenschichten hat keinen Einfluss auf die Indium-Konzentration der AlInN-Schichten
- Probe H mit einer Schichtdicke des AlInN von 2,0 nm fügt sich exakt in den Verlauf des Indium-Gehalts der übrigen Proben ein.

Die Schichtdickenabhängigkeit des Indium-Gehalts ist also tatsächlich gegeben und basiert nicht auf einer fehlerhaften Annahme des Tastverhältnisses der beiden beteiligten Schichten.

Northrup *et al.* diskutieren im Zusammenhang mit dem Einbau von Indium in GaInN-Schichten die Notwendigkeit eines sogenannten *wetting layers* aus Indiumatomen an der Oberfläche der Probe. Bei diesem handelt es sich um eine benötigte Benetzung der Oberfläche mit Indiumatomen, welche erst nach der Ausbildung zu stabilen Bedingungen für den Einbau von Indium führen soll [107, 121]. Sollten die hier untersuchten Effekte eines verspäteten Einbaus von Indium in die Schichten darin begründet liegen, dass sich zunächst ein solcher *wetting layer* aus Indiumatomen auf der Oberfläche ausbilden muss, so müsste sich durch eine Variation des Indiumangebots ein Einfluss auf den Indiumeinbau zeigen lassen. Um einen solchen Effekt in unseren Übergitterstrukturen zu untersuchen, wurde eine Probe mit erhöhtem TMIn-Fluss hergestellt. Wie in Tab. 4.3 gezeigt, unterscheidet sich Probe I zu Probe D in einem verdoppelten Quellfluss des TMIn. Probe I weist nahezu exakt die gleiche Periode der Übergitterstruktur wie Probe D auf. Ausgehend von der Annahme, dass sich

4.4 Der Indiumgehalt nominell gitterangepasster Schichten zu Beginn des Wachstums

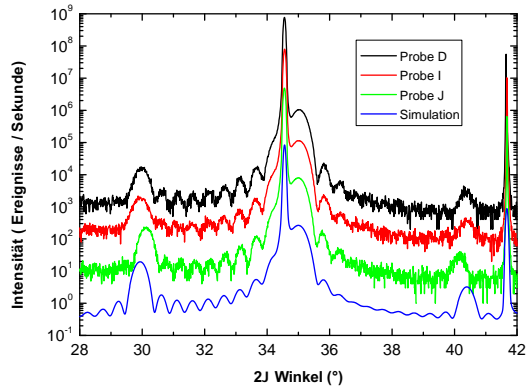
Tabelle 4.3: Untersuchung des Einflusses einer möglichen Benetzung der Oberfläche der Probe durch Indiumatome. Probe I hat im Unterschied zu Probe D einen verdoppelten TMIn-Fluss während des AlInN-Wachstums. Bei Probe J werden zunächst 15 s reines InN vor dem eigentlichen AlInN abgeschieden.

Probe	Unterschied Periode (nm)		Schicht	t_{Wachstum} (s)	Dicke (nm)	x_{In} (%)
D	In/AL=1,77	1,79	AlInN	30	0,97	10,7
			GaN	150	0,82	
I	2xTMIn	1,77	AlInN	30	0,95	11,5
	In/Al=3,54		GaN	150	0,82	
J	15s InN	1,85	InN	15	0,0	
			AlInN	30	1,00	11,5
			GaN	150	0,85	

auch die Schichtdicken der beiden AlInN- bzw. GaN-Schichten nicht signifikant voneinander unterscheiden sollten, kann der Indiumgehalt von Probe I zu $x_{\text{In}} = 11,5\%$ bestimmt werden und liegt damit im Rahmen des Fehlers, welcher wie zuvor erläutert sicherlich im Bereich von rund 1 % liegt. Als Konsequenz bedeutet dies, dass es durch eine Erhöhung des TMIn-Flusses weder möglich ist den Einbau von Indium in den Kristall unter diesen Bedingungen signifikant zu beschleunigen, noch möglich ist einen höheren Indiumgehalt des Kristalls zu erreichen. Dies mag darin begründet liegen, dass alle hier vorgestellten Proben ohnehin in einem Regime der Indiumübersättigung während der Abscheidung hergestellt werden, und eine weitere Erhöhung des Indiumangebots keinen weiteren Einfluss auf die Zusammensetzung der Schichten hat.

Die zweite Möglichkeit, eine Benetzung der Oberfläche durch Indiumatome vor der Abscheidung des AlInN zu erreichen, ist das Anbieten von Indium einige Sekunden vor dem Aluminium. Bei Probe J wurde das TMIn 15 s vor dem TMAI angeboten. Diese Probe besteht somit nominell aus einer Zehnfach-Übergitterstruktur einer (InN)/AlInN/GaN-Periode. Bei der Simulation der gemessenen symmetrischen Röntgenprofile dieser Probe muss eine Schichtdicke des InN gleich Null angenommen werden, um Simulation und Messung zur Deckung zu bringen. Für die beiden anderen Schichten ergeben sich Werte von $d_{\text{AlInN}} = 1,00\text{nm}$ und $d_{\text{GaN}} = 0,85\text{nm}$, welche sich sehr gut mit den Schichtdicken der Proben D und I decken. Der Indiumgehalt der resultierenden AlInN-Schicht lässt sich unter diesen Voraussetzungen zu 11,5 % bestimmen und ist damit exakt identisch mit dem Indiumgehalt von Probe I. Dieses Ergebnis zeigt, dass während der 15 s mit geöffneter Indiumquelle un-

Abbildung 4.21: Symmetrische Röntgenprofile aller drei Proben (D,I,J) am (0002)-Reflex zusammen mit einer Simulation basierend auf einer GaN-Schicht mit einer Schichtdicke von 0,82 nm und einer AlInN-Schicht mit einer Dicke von 0,95 nm bzw. einem Indiumgehalt von 11,5 %.



ter Anwesenheit von Ammoniak bei Wachstumstemperaturen von rund 850 °C kein reines InN abgeschieden werden kann. Außerdem ist durch den gleich bleibenden Indiumgehalt der AlInN-Schicht evident, dass sich bei diesen Wachstumstemperaturen kein *wetting-layer* aus Indiumatomen aufrecht erhalten lässt, welcher anschließend zu einem beschleunigten Einbau von Indium in die Schichten führen könnte.

Zur Verdeutlichung der Ähnlichkeit aller drei Proben sind in Abb. 4.21 die symmetrischen Röntgenprofile der (0002)-Reflexe zusammen mit der Simulation von Probe I dargestellt. Simuliert ist hier eine Zehnfach-Übergitterstruktur bestehend aus GaN-Schichten mit Schichtdicken von 0,82 nm und AlInN-Schichten mit Dicken von 0,95 nm und Indiumgehalten von 11,5 %.

Es wird deutlich, dass alle drei Proben sehr gut durch eine gemeinsame Simulation beschrieben werden können. Beim Vergleich mit Probe D ergeben sich keine signifikanten Unterschiede im Indiumgehalt der beiden Proben I und J. Eine Erhöhung des TMIIn-Flusses bzw. die Einführung eines TMIIn-Vorlaufs haben somit keinen Einfluss auf den Aufbau eines möglichen Indium *wetting layers*.

Bei der Betrachtung des Verlaufs der effektiven Indiumgehalte in Abhängigkeit von der Schichtdicke der AlInN-Schichten fällt auf, dass zu Beginn der Abscheidung des AlInN allem Anschein nach kein Indium in die Schichten eingebaut wird. Dies bedeutet im Umkehrschluss, dass zu Beginn des AlInN-Wachstums eine hoch aluminiumhaltige Phase abgeschieden wird. Wie das Experiment mit einigen Sekunden reinen InN-Wachstums zu Beginn einer jeden AlInN-Schicht zeigte, ist es nicht möglich, InN bei diesen doch sehr hohen Temperaturen abzuschcheiden. Die hoch aluminiumhaltige Phase zu Beginn ist jedoch aufgrund des fehlenden Indiums stark tensil verspannt. Eine mögliche Ursache dafür, dass es bei diesen Temperaturen dennoch möglich ist, indiumhaltige Schichten abzuschnei-

den, könnte in der großen Verspannung dieser hoch aluminiumhaltigen Phase sein. So ist es möglich, dass das System Indium inkorporiert, um die Verspannungsenergie so gering wie möglich zu halten. Die entstehende Verspannungsenergie einer Schicht kann durch die Gitterfehlpassung eben dieser und dem darunter liegenden Unterbau beeinflusst werden. Handelt es sich beim Einbau von Indium in tensil verspanntes AlN auf GaN um einen von der Verspannungsenergie getriebenen Prozess, so muss die Komposition der resultierenden AlInN-Schicht von der Gitterfehlpassung von AlN und dem Unterbau abhängig sein.

Tabelle 4.4: Vergleich zweier Übergitterstrukturen auf relaxierten GaN- und $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ -Pufferschichten. Die Indiumgehalte beider Proben sind exakt identisch, obwohl die Gitterfehlpassungen beider Proben unterschiedlich sind.

Probe	a_{Puffer}	x_{LM}	Schicht	Dicke (nm)	x_{In} (%)
D	GaN	16,7 %	AlInN	0.97	10.7
	3,1850 Å		GaN	0.82	
K	$\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$	13,6 %	AlInN	0.99	10.7
	3,1701 Å		GaN	0.80	

Zur Überprüfung der Abhängigkeit des Indiumeinbaus von der Gitterfehlpassung bzw. der a -Gitterkonstante des Unterbaus wurde eine Probe auf einer relaxierten $\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}$ -Pufferschicht abgeschieden. Die a -Gitterkonstante dieser Pufferschicht beträgt $a_{\text{Al}_{0,2}\text{Ga}_{0,8}\text{N}} = 3,1701 \text{ Å}$. Die Gitteranpassung einer darauf abgeschiedenen AlInN-Schicht liegt in diesem Fall bereits bei einer Komposition von 13,7 % vor. Wie der Tabelle 4.4 zu entnehmen ist, sind die Indiumgehalte von Probe D und K identisch. Die identischen Indiumgehalte der beiden Proben - trotz unterschiedlicher Gitterfehlpassungen - legen nahe, dass es sich beim Einbau von Indium in den Kristall also nicht um einen Effekt handeln kann, welcher von der Verspannungsenergie getrieben wird.

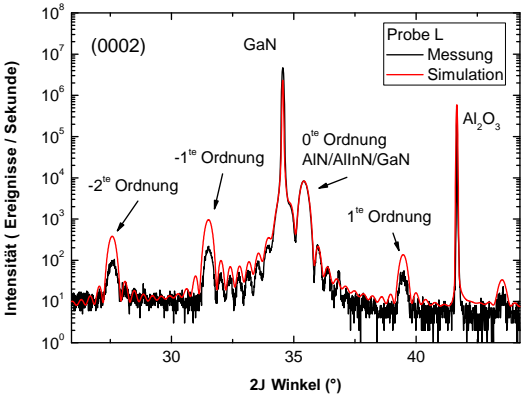
Sollte es zwingend nötig sein, dass zunächst eine hoch aluminiumhaltige Phase zu Beginn des AlInN-Wachstums wächst, so sollte eine Beeinflussung der Zusammensetzung durch eine beabsichtigte AlN-Schicht vor jeder AlInN-Schicht möglich sein.

In der Übergitterstruktur von Probe L ist vor jeder AlInN/GaN-Doppelschicht eine AlN-Schicht eingefügt. Die Wachstumsrate dieser AlN-Schicht sollte rund 90 % der Wachstumsrate von 10%igem AlInN sein. Zusammen mit einer Wachstumszeit von 15 s sollte dies zu einer Schichtdicke des AlN von 0,4 nm bis 0,5 nm führen. Zur besseren Vergleichbarkeit basiert auch diese Probe wieder auf Probe D. Besteht ein Zusammenhang zwischen dem Indiumgehalt der AlInN-Schichten und dem Bestehen eines an Indium verarmten Bereichs,

Tabelle 4.5: Untersuchung des Einflusses einer dünnen AlN-Schicht vor jeder AlInN-Schicht. Nach der Abscheidung eines halben Nanometers AlN zeigt eine folgende AlInN-Schichten keinen gesteigerten Indiumgehalt.

Probe	Unterschied	Periode (nm)	Schicht	Zeit (s)	Dicke (nm)	x_{In} (%)
D		1,79	AlInN	30	0,97	10,7
			GaN	150	0,82	
L	15s AlN	2,33	AlN	15	0,54	11,2
		$\Delta=0,54$	AlInN	30	0,97	
			GaN	150	0,82	

Abbildung 4.22: Messung (schwarz) und Simulation (rot) am (0002)-Reflex einer Zehnfach-Übergitterstruktur bestehend aus AlN, AlInN und GaN. Das Probenmodell bestehend aus 0,97 nm AlInN und 0,82 nm GaN aus Probe D, lediglich erweitert um eine AlN-Schicht mit der Dicke der Differenz beider Perioden (0,54 nm) beschreibt das Röntgenprofil auf Anhieb.



so sollte diese Probe einen Indiumgehalt aufweisen, wie er sonst für eine Übergitterstruktur mit einer 1,5 nm dicken AlInN-Schicht zu erwarten wäre.

In Abb. 4.22 sind die Messung und Simulation des (0002)-Röntgenprofils von Probe L dargestellt. Aus den Abständen der unterschiedlichen Ordnungen des (0002)-Reflexes der Übergitterstruktur ergibt sich eine Periode dieser Probe von 2,33 nm. Probe D besitzt eine Periode von 1,79 nm. Die Differenz beider beträgt also 0,54 nm und entspricht der Dicke des zusätzlichen AlN. Die Simulation des Röntgenprofils mit Werten für die Schichtdicken des AlInN und GaN aus Probe D mit einer zusätzlichen AlN-Schicht mit einer Dicke von 0,54 nm beschreibt die Messung auf Anhieb sehr gut und bestätigt die Anwendbarkeit dieses Probenmodells. Der Indiumgehalt der AlInN-Schicht muss in diesem Fall geringfügig von 10,7 % auf 11,2 % nach oben korrigiert werden. Unter Berücksichtigung der Indiumge-

halte aller anderen Proben mit Schichtdicken der AlInN-Schicht von rund 1 nm liegt dieser Wert jedoch im Rahmen und unterscheidet sich nicht signifikant von den anderen Werten. Ein gesteigerter Einbau von Indium in die AlInN-Schicht nach einem beabsichtigten AlN-Wachstum ist somit auszuschließen.

Alle diese Ergebnisse lassen vermuten, dass der verzögerte Indiumeinbau in die AlInN-Schichten weder auf makroskopischen Kristalleffekten beruht, noch durch apparative Gegebenheiten hervorgerufen wird. So haben die Gitterfehlangepassung der Schichten und auch die Gasphasenzusammensetzungen keinen nachweisbaren Einfluss auf die Zusammensetzung der AlInN-Schichten. Viel wahrscheinlicher ist es, dass zur Klärung der Ursache des verzögerten Indiumeinbaus, aber auch warum es überhaupt erst möglich wird, bei Temperaturen von rund 850 °C indiumhaltige Schichten abzuscheiden, Prozesse an der Oberfläche der Proben herangezogen werden müssen.

Cosendey *et al.* beobachteten bei Experimenten zum Wachstum von DBR-Spiegeln bestehend aus 42 Paaren von nahezu gitterangepasstem AlInN und GaN, dass für die Abscheidung defektfreier Strukturen ohne Spannungsrisse der Indiumgehalt der AlInN-Schichten mit rund 20 % höher gewählt werden muss, als dies für gitterangepasstes Material der Fall sein sollte [122]. Außerdem konnten die Oberflächenmorphologie und die Defektdichte durch Wahl eines hohen In/Al-Verhältnisses in der Gasphase während der Abscheidung verbessert werden [122]. Cosendey *et al.* führen dies auf eine Entmischung der Gruppe-III-Atome während des Wachstums zurück, welches ein bekanntes Problem für Arsen basierte ternäre III/V-Halbleiterverbindungen ist [123]. Der Verlauf des Indiumgehalts soll nach dem Modell von Muraki *et al.* [124] der Gleichung 4.2 folgen:

$$x_n = x_0 (1 - R^n) \quad (1 \leq n \leq N), \quad (4.2)$$

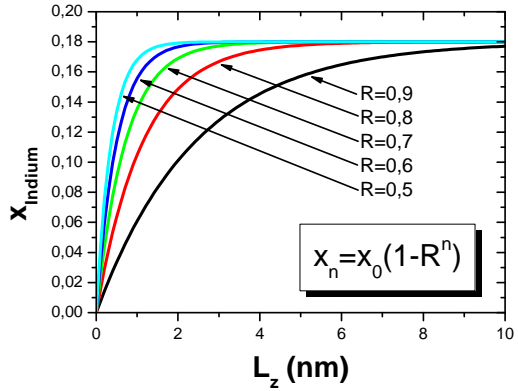
Hierbei sind x_n der Indiumgehalt der n^{ten} Monolage¹, x_0 der nominell angestrebte Indiumgehalt, R der Entmischungskoeffizient und N die Anzahl der abgeschiedenen Monolagen. Der Entmischungskoeffizient entspricht der Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Indiumatom aus der n^{ten} Monolage erst in der $(n+1)^{\text{ten}}$ Monolage eingebaut wird.

Der Indiumgehalt soll im Folgenden jedoch nicht in ganzzahligen Vielfachen der Monolagen ausgedrückt werden, sondern von der Ortskoordinate L_z , also dem Abstand von der Grenzfläche der Schicht und des Unterbaus, abhängen. Da innerhalb einer c -Gitterkonstante zwei Gruppe-III-Monolagen enthalten sind, beträgt der Abstand der Monolagen gerade eine halbe c -Gitterkonstante in Wachstumsrichtung. Es gilt also:

$$n = \frac{L_z}{c/2} = \frac{2L_z}{c} \quad (4.3)$$

¹ Von einer Monolage wird in diesem Zusammenhang bei einer Schicht mit einer Dicke der halben c -Gitterkonstante gesprochen. Also $d = c_0/2$.

Abbildung 4.23: Berechnung des theoretischen Verlaufs des Indiumgehalts der AlInN-Schichten in Abhängigkeit von der Ortskoordinate L_z von der Grenzfläche von GaN und AlInN für verschiedene Entmischungsparameter R . Mit steigendem Entmischungsparameter vergrößert sich die Zone mit zu geringem Indiumgehalt.



Somit folgt der Indiumgehalt in Abhängigkeit von der Ortskoordinate L_z der folgenden Gleichung:

$$x(L_z) = x_0 \cdot \left(1 - R^{\frac{2L_z}{c}}\right) \quad (4.4)$$

In Abb. 4.23 sind die theoretischen Verläufe des Indiumgehalts für fünf unterschiedliche Entmischungsparameter von 0,5 bis 0,9 mit einer Sollkomposition von $x_0 = 18\%$ nach Gl. 4.4 dargestellt. Abhängig vom Entmischungsparameter steigt der Indiumgehalt der Schichten nur langsam auf den nominell angestrebten Wert von 18 % an. Durch das Fehlen des nötigen Indiums für die Gitteranpassung sind die Schichten anfänglich tensil verspannt, was im Fall der von Cosendey *et al.* abgeschiedenen DBR-Strukturen beim Überschreiten der kritischen Schichtdicke zu Spannungsrissen führte [122]. Um die tensile Verspannung der Schichten im fortschreitenden Wachstum zu kompensieren, mussten Cosendey *et al.* nominell eine Zusammensetzung oberhalb des Punkts für die Gitteranpassung anstreben.

Ausgehend von einem Verlauf des Indiumgehalts nach Gl. 4.4 berechnet sich der effektive Indiumgehalt einer abgeschiedenen Schicht mit der Schichtdicke d als Quotient aus dem Integral über den realen Verlauf des Indiumgehalts und der Schichtdicke d . Es gilt:

$$x_{eff}(d) = \frac{\int_0^d x_0 \left(1 - R^{\frac{2L_z}{c}}\right) dL_z}{d} \quad (4.5)$$

$$= \frac{x_0}{d} \cdot \left[L_z - \frac{c \cdot R^{\frac{2L_z}{c}}}{2 \cdot \ln R} \right]_0^d \quad (4.6)$$

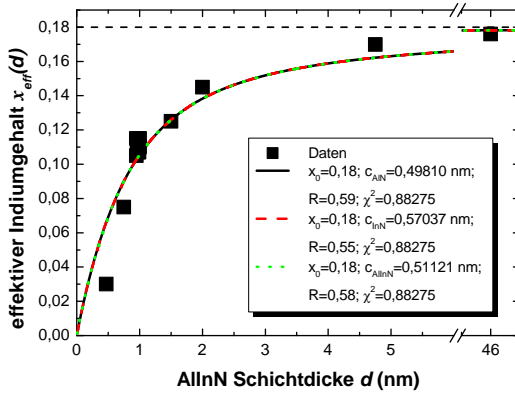


Abbildung 4.24: Verlauf der schicht-dickenabhängigen effektiven Indiumgehalte der Übergitterstrukturen zusammen mit den nichtlinearen Anpassungen gemäß Gl. 4.7 mit $x_0 = 0,18$ und den unterschiedlichen c -Gitterkonstanten von AlN, InN und gitterangepasstem AlInN. [125]

Nach dem Einsetzen der Grenzen 0 und d erhalten wir für den mittleren Indiumgehalt x_{eff} einer Schicht mit der Schichtdicke d den folgenden Ausdruck:

$$x_{eff}(d) = \frac{x_0}{d} \cdot \left[d - \frac{c \cdot R^{\frac{2d}{c}}}{2 \ln R} + \frac{c}{2 \ln R} \right] \quad (4.7)$$

Mit Gleichung 4.7 lassen sich nun die gemessenen mittleren Indiumgehalte der AlInN-Schichten aus den Übergitterstrukturen in Abhängigkeit von der Schichtdicke anpassen. Als Fit-Parameter dient der Entmischungsparameter R . Da sich die c -Gitterkonstante mit zunehmender Schichtdicke aufgrund des ansteigenden Indiumgehalts ändert, werden für eine Abschätzung die c -Gitterkonstanten von AlN, InN und gitterangepasstem AlInN eingesetzt. Zu Beginn des Wachstums entspricht aufgrund des fehlenden Indiums in der Schicht die c -Gitterkonstante der des AlN. Mit fortschreitender Abscheidung steigt der Indiumgehalt auf die nominell angestrebte Komposition von 18% an, und die c -Gitterkonstante nähert sich der c -Gitterkonstante von gitterangepasstem AlInN an. Die c -Gitterkonstante von reinem InN ist in diesem Fall zusätzlich mit aufgenommen, um ein Gefühl dafür zu bekommen, welchen Einfluss die Wahl der Gitterkonstante auf den Entmischungsparameter R hat. Der Wert für die Sättigungskomposition x_0 wird mit 18 % angenommen.

In Abb. 4.24 sind die mittleren Indiumgehalte der Übergitterstrukturen in Abhängigkeit von der Schichtdicke d zusammen mit den nichtlinearen Anpassungen nach Gl. 4.7 gezeigt. Es ist zu erkennen, dass die drei Kurven die Datenpunkte exakt gleich gut beschreiben. Die korrigierten χ^2 -Werte betragen für alle drei Kurven $\chi^2 = 0,88275$. Ausgehend von einer Sättigungskomposition von 18% und der c -Gitterkonstante des AlN ergibt sich der Entmischungsparameter zu $R = 0,59$. Unter Berücksichtigung der Gitterkonstante von gitterangepasstem AlInN bestimmt sich der Entmischungsparameter zu $R = 0,58$. Selbst unter

der Annahme der *c*-Gitterkonstante von reinem InN - welche hier physikalisch nicht zu rechtfertigen wäre - beträgt der Entmischungsparameter noch immer $R = 0,55$.

Diese Ergebnisse machen deutlich, dass ausgehend vom Modell von Muraki *et al.* die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein an der Oberfläche adsorbiertes Indiumatom erst in der nächsten Monolage eingebaut wird, in unseren Experimenten rund 58 % bis 59 % beträgt. Wird ein großer Anteil der adsorbierten Indiumatome nicht in der entsprechenden Monolage eingebaut, sondern aufgrund der Entmischung erst in späteren Monolagen, so wird sich an der Oberfläche eine hoch indiumhaltige Phase bilden, welche wiederum die verringerte Einbauwahrscheinlichkeit kompensiert. Der Entmischungsparameter R der Indiumatome wird sich primär über die Temperatur regulieren lassen. Da im Fall von GaInN die Unterschiede zwischen den beiden beteiligten binären Verbindungen GaN und InN nicht so stark ausgeprägt sind wie für AlInN und die GaInN-Schichten bei sehr viel tieferen Temperaturen abgeschieden werden, tritt dieses Problem bei der Abscheidung von GaInN vermutlich nicht so deutlich zu Tage. Bis sich bei der Abscheidung von AlInN an der Oberfläche stabile Bedingungen für den Indiumeinbau ausgebildet haben, wächst zunächst - wie es die Experimente zeigen - eine hoch-aluminiumhaltige und daher stark tensil gespannte Schicht. Um den Entmischungsparameter zu verringern, wäre eine weitere Verringerung der Wachstumstemperatur nötig. Um die Oberflächenmorphologie zu verbessern, wäre jedoch eine Erhöhung der Wachstumstemperatur notwendig. Daher handelt es sich bei den genutzten Wachstumstemperaturen bereits um einen Kompromiss zwischen der Effektivität des Indiumeinbaus und der Verbesserung der Oberflächenmorphologie.

Das oben diskutierte Modell basierend auf einer Entmischung der Aluminium- und Indiumatome an der Oberfläche beschreibt zwar das Verhalten und den schichtdickenabhängigen Verlauf der effektiven Indiumgehalte dünner AlInN-Schichten recht gut, die Oberflächenmorphologie und der in Abb. 4.24 enthaltene Offset des Indiumgehalts hin zu sehr dünnen Schichten bleiben jedoch unberücksichtigt.

Erinnern wir uns an die typischen Oberflächenmorphologien nominell gitterangepasster AlInN-Schichten mit Schichtdicken um die 50 nm (siehe Abb. 4.11 c,d), so gleichen diese doch stark der Struktur einer Nukleationsschicht mit vielen kleinen dreidimensionalen Nukleationskeimen. Durch die Einführung einer Tieftemperatur AlN-Nukleationsschicht revolutionierten Amano *et al.* im Jahre 1986 die Abscheidung von GaN [2]. Diese Nukleationsschicht wurde bei einer Temperatur von rund 900 °C abgeschieden und verbesserte die Eigenschaften der nachfolgenden GaN-Schichten signifikant. Es ist doch sehr auffällig, dass die von Amano *et al.* gewählten Wachstumstemperaturen für die AlN-Nukleation den Abscheidungstemperaturen des AlInN so sehr ähneln. Tatsächlich sind die Temperaturen im Falle des AlInN sogar etwas niedriger. Aus diesem Grund ist es nicht von der Hand zu weisen, dass auch das AlInN zu Beginn der Abscheidung mit großer Wahrscheinlichkeit

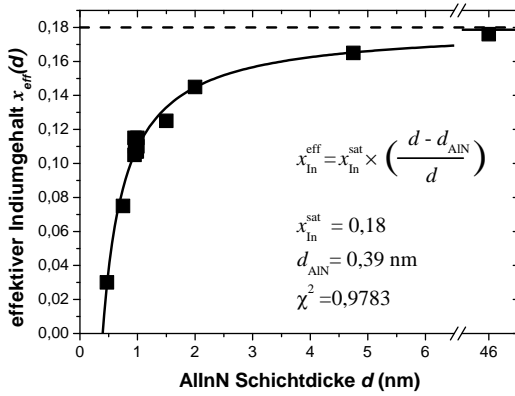


Abbildung 4.25: Datenpunkte der Proben A bis H zusammen mit dem Fit gemäß Gl. 4.8. Es ergeben sich die Werte $x_{\text{In}}^{\text{sat}} = 0,18$ und $d_{\text{AlN}} = 0,39 \text{ nm}$ und ein korrigiertes Bestimmtheitsmaß von $R^2 = 0,9783$. [125]

eher dreidimensional nukleieren wird.

Zusätzlich legt der Offset des Indiumgehalts das Wachstum einer nahezu reinen AlN-Schicht zu Beginn einer jeden AlInN-Schicht nahe. Ausgehend von einer heterogenen Nukleation zu Beginn der Abscheidung, welche größtenteils aus AlN-Nukleationskeimen besteht, ergibt sich ein vereinfachtes Modell zur Beschreibung des Verlaufs der effektiven Indiumgehalte. In diesem Modell wird die Summe aller AlN-Nukleationskeime als eine dünne Schicht aus reinem AlN beschrieben. Der effektive Indium-Gehalt $x_{\text{In}}^{\text{eff}}$ der resultierenden Doppelschicht aus AlN und AlInN mit der Gesamtschichtdicke d hängt dann zum einen von der Sättigungskomposition $x_{\text{In}}^{\text{sat}}$ des AlInN, zum anderen von der Schichtdicke d_{AlN} des reinen AlN ab. Der effektive Indium-Gehalt folgt dann aus

$$x_{\text{In}}^{\text{eff}} = x_{\text{In}}^{\text{sat}} \cdot \left(\frac{d - d_{\text{AlN}}}{d} \right). \quad (4.8)$$

Der Verlauf der gemessenen Indium-Gehalte der Übergitterstrukturen kann nun unter der Annahme einer reinen AlN-Schicht zu Beginn des AlInN-Wachstums mit Gleichung 4.8 angepasst werden. Die Fitparameter sind in diesem Fall die Sättigungskomposition $x_{\text{In}}^{\text{sat}}$ und die Dicke des reinen AlN d_{AlN} . In Abb. 4.25 sind die Datenpunkte der Proben A bis H zusammen mit dem Fit gemäß Gl. 4.8 gezeigt.

Aus dem Fit ergibt sich eine Sättigungskomposition von $x_{\text{In}}^{\text{sat}} = (18,0 \pm 0,3) \%$, welche somit exakt die nominell angestrebte Zusammensetzung der AlInN-Schichten für große Schichtdicken widerspiegelt. Die Schichtdicke für die reine AlN-Schicht zu Beginn einer jeden AlInN-Schicht ergibt sich aus dem Fit zu $d_{\text{AlN}} = (0,39 \pm 0,01) \text{ nm}$. Das korrigierte Bestimmtheitsmaß des Fits von $\chi^2 = 0,9783$ legt nahe, dass dieses doch sehr einfache Modell eine sehr gute Beschreibung der effektiven Indium-Gehalte in Abhängigkeit von der

Schichtdicke zulässt. Natürlich steht außer Frage, dass es sich bei der realen Verteilung des Indiums in den AlInN-Schichten sicherlich nicht um eine Stufenfunktion handelt. Es lässt jedoch eine gute Abschätzung über die Menge des fehlenden Indiums in den Schichten zu. Die Soll-Komposition von 18,0 % Indium und die Schichtdicke der reinen AlN-Schicht aus der Anpassung der Datenpunkte von 0,39 nm lassen darauf schließen, dass ein Produkt von $7,0 \text{ nm} \cdot \% \text{ an Indium}$ fehlt.

Dieses Modell schließt natürlich nicht aus, dass zusätzlich Effekte wie die Entmischung der Indium- und Aluminiumatome existieren und den Einbau von Indium behindern. Es ist jedoch auffällig, dass das doch so einfache Modell den Verlauf der schichtdickenabhängigen Komposition in einem solch guten Maße beschreibt.

Somit ist eine heterogene Nukleation zu Beginn des AlInN-Wachstums die wahrscheinlichste Ursache für die typischen Oberflächenmorphologien von AlInN-Schichten, bestehend aus kleinen Erhabenheiten mit einem Durchmesser von rund 100 nm und der Ausbildung der V-förmigen Löcher. Andere Probleme und Effekte, wie z. B. das starke Aufrauen der Oberfläche und die damit einhergehende Aufspaltung der Zusammensetzung, welche bei der Abscheidung dicker AlInN-Schichten beobachtet werden, sind höchstwahrscheinlich nur Konsequenzen aus diesem Verhalten in den ersten wenigen Nanometern der AlInN-Schichten und den geringen Wachstumstemperaturen. Diese intrinsischen Eigenschaften der AlInN-Schichten werden sich ohne einen Trick zur Vermeidung der heterogenen Nukleation zu Beginn der Abscheidung und eine drastische Erhöhung der Wachstumstemperaturen nicht vermeiden lassen.

Im folgenden und letzten Abschnitt dieses Kapitels soll gezeigt werden, wie es trotz der vorgestellten Probleme möglich wird, Gesamtschichtdicken mit der benötigten Größe abzuscheiden, um so die Vorteile des gitterangepassten AlInN gegenüber AlGaIn in optisch aktiven Bauelementen dennoch nutzen zu können.

4.5 Abscheidung dicker AlInN-Schichten mit GaN-Planarisierungsschichten

Wie in den vorhergegangenen Abschnitten deutlich gemacht wurde, entstehen die Probleme während der Abscheidung von nominell gitterangepassten AlInN-Schichten nicht erst beim Überschreiten einer kritischen Schichtdicke. Viel früher - bereits in den ersten wenigen Nanometern - machen sich Instabilitäten im Indiumeinbau bemerkbar, welche später zu mikroskopischen Verspannungen und damit einem Aufschaukeln der Indiumverteilung führen. Nichts desto trotz hat gitterangepasstes AlInN gegenüber den herkömmlichen AlGaIn-Schichten mit Aluminiumgehalten im Bereich von 10 % den Vorteil eines höheren Kontrasts

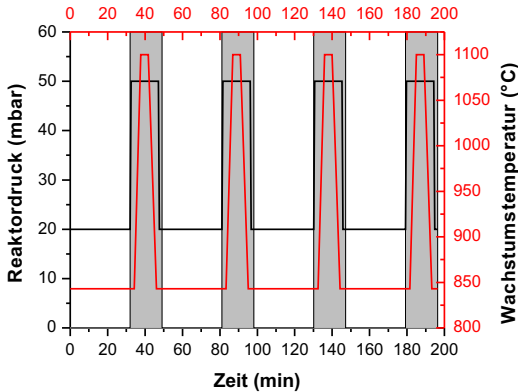


Abbildung 4.26: Verlauf der Temperatur- (rot) und Druckrampen (schwarz) während der Vierfach-Struktur aus nominell gitterangepasstem AlInN und GaN-Zwischenschichten zur Planarisierung der Oberfläche.

im Brechungsindex zu GaN und eines verbesserten Offsets der Bandlücke. Leider ist es aufgrund der genannten Probleme nicht möglich, das AlInN mit den benötigten Schichtdicken von mehreren hundert Nanometern abzuschneiden, ohne die Morphologie und Kristallstruktur dabei vollständig zu degradieren.

Um die Vorteile eines verbesserten Einschlusses der optischen Welle in der aktiven Zone von optisch aktiven Bauelementen und eine erhöhte Potenzialbarriere für Elektronen auf der p-leitenden Seite von LEDs und Laserdioden dennoch nutzen zu können, können Mehrschichtstrukturen aus AlInN und GaN genutzt werden. Hierbei werden zwischen einzelnen AlInN-Schichten mit Schichtdicken unterhalb der kritischen Schichtdicke GaN-Zwischenschichten zur Planarisierung eingeführt. In diesen nur wenige Nanometer dicken GaN-Zwischenschichten werden die Wachstumsparameter so eingestellt, dass es möglich ist, die Strukturen wieder vollständig zu planarisieren. Anschließend wächst die folgende AlInN-Schicht auf einer GaN-Oberfläche ähnlich der der ursprünglichen Puffer-Schicht.

Die einzelnen AlInN-Schichten werden unter Standardbedingungen für nominell gitterangepasstes AlInN abgeschieden. Nach einem AlInN-Wachstum von 32 min bei 843 °C und 20 mbar wird zeitgleich mit dem Umschalten der Quellen von Aluminium und Indium auf Gallium der Reaktordruck für das GaN-Wachstum innerhalb von 30 s von 20 mbar auf 50 mbar angehoben. Die Wachstumstemperatur wird zunächst noch für eine Dauer von 2:15min während des GaN-Wachstums konstant gehalten, bevor sie für das Hochtemperatur-GaN-Wachstum auf 1100 °C angehoben wird. Unter diesen Bedingungen wird nun für weitere 4 min GaN abgeschieden. Um nun die Wachstumsbedingungen für das folgende AlInN-Wachstum herzustellen, wird noch während des GaN-Wachstums die Temperatur innerhalb von 4:20min auf 843 °C gesenkt und anschließend noch eine weitere Minute GaN bei die-

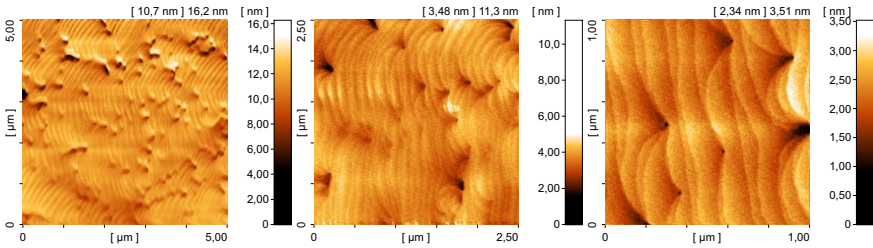


Abbildung 4.27: AFM-Bilder der Oberfläche einer Struktur bestehend aus vier Wiederholungen von rund 60 nm nominell gitterangepassten AlInN mit rund 20 nm dicken GaN-Zwischenschichten. Die Bilder zeigen die Oberfläche der letzten GaN-Schicht. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Oberflächenmorphologie dank der Planarisierung wieder von Terrassen und Stufen charakterisiert ist, obwohl es sich hierbei um eine Gesamtschichtdicke des AlInN von rund 240 nm handelt. Die RMS-Rauheiten der Bilder mit $(5,0 \times 5,0) \mu\text{m}^2$, $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ und $(1,0 \times 1,0) \mu\text{m}^2$ sind 1,2 nm, 0,5 nm bzw. 0,3 nm.

ser Temperatur abgeschieden. Zuletzt wird noch innerhalb von 30 Sekunden der Druck wieder auf 20 mbar gesenkt und weitere 1:30min GaN abgeschieden. Mit dem Schließen der Galliumquelle und Öffnen der Aluminium- und Indiumquellen wird das Wachstum der folgenden Periode eingeleitet. Das GaN-Wachstum, welches bei den tiefen Temperaturen der AlInN-Schichten stattfindet, dient dem Schutz des Indiums in diesen Schichten. Würde die Temperatur zu schnell nach dem Wachstum der einzelnen AlInN-Schichten angehoben, so besteht die Gefahr, dass sich das AlInN aufgrund der thermischen Instabilität bei solch hohen Temperaturen wieder zersetzt. Um dies zu verhindern werden die Schichten zunächst mit GaN überdeckt, welches eine wesentlich höhere thermische Belastbarkeit aufweist. Eine schematische Darstellung der Temperatur- und Druckrampen während des Wachstums dieser Schichten ist in Abb. 4.26 gezeigt.

In Abb. 4.27 ist die Oberfläche einer solchen Vierfach-Struktur gezeigt. Wie zu erkennen ist, zeichnet sich die Oberfläche der letzten GaN-Schicht wieder durch eine klare von Terrassen- und Stufenstrukturen dominierte Morphologie aus. Die Gesamtschichtdicke des AlInN beträgt in diesem Fall rund 240 nm. Dennoch ist die Oberfläche mit RMS-Rauheiten zwischen 1,2 nm für das $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ große AFM-Bild und 0,3 nm für das $(1,0 \times 1,0) \mu\text{m}^2$ große AFM-Bild sehr glatt.

Bei der Vermessung des Verspannungszustandes dieser Probe mittels einer reziproken Gitterkarte am $(10\bar{1}5)$ -Reflex stellt sich heraus, dass sowohl der Peak nullter Ordnung der AlInN/GaN-Überstruktur als auch alle höheren Ordnungen keine unterschiedliche Streukomponente des Beugungsvektors parallel zur Oberfläche als die GaN-Pufferschicht haben. Die gesamte Schichtstruktur aus vier Wiederholungen von AlInN und GaN ist somit pseudomorph auf der GaN-Pufferschicht aufgewachsen (siehe Abb. 4.28, gestrichelte Linie). Es

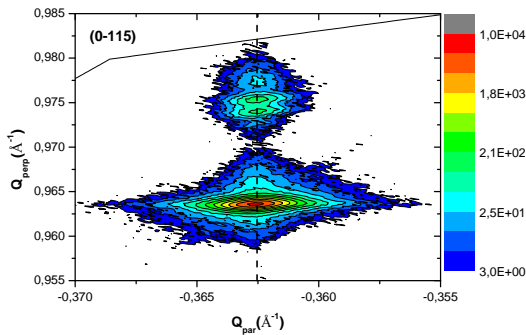


Abbildung 4.28: Asymmetrische reziproke Gitterkarte am (0115)-Reflex der AlInN/GaN-Vierfachstruktur. Es ist gut zu erkennen, dass sowohl der Peak nullter Ordnung als auch alle weiteren Interferenzen aufgrund der unterschiedlichen beiden Schichten und Wiederholungen pseudomorph auf der GaN-Pufferschicht aufgewachsen sind. Es ist kein Peak zu erkennen, welcher zu einer parasitären und teils relaxierten Komposition gehört, wie es in Abb. 4.12 b) der Fall ist. [126]

gibt keine Hinweise auf eine parasitäre Komposition in dieser Struktur, obwohl die Gesamtschichtdicke des AlInN in der Summe die Schichtdicke überschreitet, ab welcher typischerweise eine Kompositionsaufspaltung im nominell gitterangepassten AlInN, mit zum Teil relaxierten Bereichen zu beobachten ist. Dies zeigt schön, dass es trotz der bei der Abscheidung dicker Schichten auftretenden Probleme möglich ist, sich durch eine Planarisierung der Struktur durch GaN-Zwischenschichten der Vorteile des AlInN zu bedienen.

Aus diesem Grund wird es überhaupt erst möglich, z. B. DBR-Spiegel bestehend aus vielen Wiederholungen von AlInN- und GaN-Schichten abzuscheiden, welche über die gesamte Schichtdicke pseudomorph aufwachsen und von einer hohen optischen Güte sind [18, 89, 127].

5 Nicht- und semi-polares AlInN auf unterschiedlichen GaN-Substraten

Nachdem im letzten Kapitel die *c*-orientierten und damit polaren AlInN-Schichten besprochen wurden, sollen im aktuellen Kapitel nicht- und semi-polare AlInN-Schichten der *m*- und (11 $\bar{2}$ 2)-Orientierung vorgestellt werden.

Gerade semi-polare Epitaxieschichten haben in den letzten Jahren stark dazu beigetragen, die Leistungsfähigkeit von optischen Bauelementen basierend auf Gruppe-III-Nitriden zu verbessern [128–132]. Die meiste Aufmerksamkeit erhielt dabei das GaInN-Materialsystem. Im Gegensatz dazu ist nichtpolares AlInN bisher nur mäßig, und semi-polares AlInN nahezu überhaupt nicht untersucht. Bisher existieren nur einige wenige Veröffentlichungen in der Literatur, welche sich mit den strukturellen und optischen Eigenschaften von *a*- und *m*-planaren AlInN-Schichten beschäftigen [133–137]. Semi-polares, [11 $\bar{2}$ 2]-orientiertes AlInN ist neben unserer Publikation [138] erst Anfang 2015 in der Literatur erschienen [139].

Auch für nicht- und semi-polares AlInN gilt, dass die idealen Wachstumsbedingungen der beiden beteiligten binären Mischungspartner InN und AlN voneinander sehr verschieden sind. Zu diesem grundlegenden Problem, welches wie bereits diskutiert zu großen Komplikationen bei der Abscheidung gitterangepassten *c*-orientierten Materials führt, kommen im Fall von nicht- und semi-polaren Schichten noch zwei weitere Schwierigkeiten hinzu. Nicht- und semi-polare Schichten werden bei der Heteroepitaxie in der Wachstumsfläche anisotrop verspannt. Dies liegt in der Tatsache begründet, dass die *a*- und *c*-Gitterkonstante eines einzelnen binären Materials nicht identisch sind, jedoch beide abhängig von der Orientierung mehr oder weniger an der Bildung der Wachstumsoberfläche beteiligt sind. Des Weiteren kann AlInN im Falle der nicht- und semi-polaren Schichten nicht länger gleichzeitig in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsfläche gitterangepasst werden. Dieser Effekt beruht auf den unterschiedlichen *c/a*-Verhältnissen der einzelnen binären Gruppe-III-Nitride AlN, GaN und InN (vgl. hierzu Tab. 2.1).

Im Folgenden soll dies einmal an einem der einfachsten Fälle - der *m*-Fläche - veranschaulicht werden. Wie in Abb. 2.2 dargestellt, wird die *m*-Fläche aus den *a*- und *c*-Richtungen der Wurtzitstruktur aufgespannt. Eine Gitteranpassung des AlInN an die *a*-Gitterkonstante des GaN liegt bei einem Indiumgehalt von rund 18% vor. Eine Gitteranpassung an die *c*-Gitterkonstante des GaN wird erst bei einer Komposition von rund 27% erreicht. Somit ist

schnell ersichtlich, dass es im Fall einer m-orientierten Probe nicht möglich ist, die Gitterkonstanten des AlInN und des GaN in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsoberfläche bei gleicher Zusammensetzung aneinander anzupassen. Liegt eine Gitteranpassung des AlInN an die *a*-Gitterkonstante des GaN vor, so weist das AlInN in die dazu senkrecht stehende *c*-Richtung aufgrund des zu geringen Indiumgehalts eine negative Gitterfehlanpassung auf. Bei einer Gitteranpassung in *c*-Richtung mit einem Indiumgehalt von 27% übersteigt der Indiumgehalt des AlInN den benötigten Gehalt von 18% für eine Gitteranpassung in *a*-Richtung. Die Einheitszelle des AlInN weist in diese Richtung gegenüber dem GaN also eine positive Gitterfehlanpassung auf und wird bei der Heteroepitaxie auf GaN eine kompressive Verspannung aufweisen. Gleiches gilt in Abhängigkeit vom Winkel zwischen der Wachstumsfläche und der kristallographischen *c*-Richtung auch für alle semi-polaren Orientierungen.

Trotz alledem ist AlInN auch für nicht- und semi-polare Bauelemente das Materialsystem der Wahl, wenn es darum geht, das AlGaIn in Mantelschichten und Elektronenbarrieren zu ersetzen, denn die Vorteile des größeren Unterschieds im Brechungsindex und der erhöhte *Offset* in der Bandstruktur bleiben auch für die semi-polaren Strukturen erhalten. Ferner eröffnen sich durch die unterschiedlichen Zusammensetzungen für die Gitteranpassung in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsoberfläche durch gezielte Relaxation neue Möglichkeiten für die Beeinflussung des Verspannungszustandes nachfolgender Schichten. So könnten z. B. die optischen Eigenschaften von anisotrop verspannten GaInN/GaN-Multiquantumwell-Strukturen durch eine beabsichtigte und unabhängige Relaxation des AlInN in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsebene gezielt beeinflusst und gesteuert werden.

In den folgenden Abschnitten werden das Wachstum und die Charakterisierung von nicht- und semi-polaren AlInN-Schichten thematisiert. Zunächst werden (11 $\bar{2}$ 2)-orientierte AlInN-Schichten auf (11 $\bar{2}$ 2)-GaN-Pufferschichten auf strukturiertem r-Saphir vorgestellt. Anschließend werden m-orientierte AlInN-Schichten auf m-orientierten GaN-Pufferschichten auf m-orientiertem 6H-SiC und freistehenden m-orientierten GaN-Pseudosubstraten im Detail erläutert.

Das Hauptaugenmerk bei diesen Untersuchungen liegt auf möglichen Gemeinsamkeiten und Unterschieden dieser Schichten mit den polaren Schichten aus Kapitel 4. So soll untersucht werden, ob sich die während der Abscheidung polarer Strukturen auftretenden Probleme auch im Fall der nicht- und semi-polaren Schichten zeigen und ob Unterschiede in der Einbaueffizienz von Indium auf den unterschiedlich orientierten Substraten und Unterbauten zeigen lassen. Zu guter Letzt wird die Realisierbarkeit kontrolliert relaxierter eindimensional gitterangepasster Schichten untersucht.

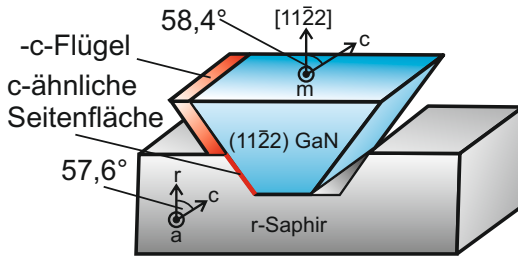


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Wachstums einer $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten GaN-Schicht auf einem maskenlosen strukturierten r-planaren Saphir-Substrat. (Abb. nach Okada *et al.* [140])

5.1 Wachstum von $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertem AlInN

Das Wachstum der $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten AlInN-Schichten findet auf GaN-Pufferschichten gleicher Orientierung statt. Diese werden zuvor auf einem strukturierten Saphir-Substrat mit r-Orientierung abgeschieden. Hierzu werden rund $1,0\,\mu\text{m}$ tiefe Gräben entlang der a-Richtung in r-orientierte Saphir-Substrate geätzt. Der Winkel der Seitenwände wird so gewählt, dass eine der beiden Seitenflächen einen c-ähnlichen Charakter aufweist. Das spätere Wachstum des GaN mittels MOVPE findet schließlich ohne Maskierung der anderen Bereiche fast ausschließlich auf der c-ähnlichen Facette des jeweiligen Grabens statt. Durch eine ausreichend lange Abscheidung des GaN-Puffers wird zunächst eine Koaleszenz der einzelnen Streifen miteinander erreicht. Anschließend erfolgt durch eine weitere Abscheidung eine Planarisierung der Oberfläche. Okada *et al.* waren im Jahr 2009 die Ersten, denen es gelang, auf diese Art und Weise $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertes GaN auf Fremdsubstraten zu realisieren. Abb. 5.1 zeigt eine schematische Darstellung dieses Wachstumsprinzips nach Okada *et al.* [140].

Da die einzelnen Streifen jedoch nicht ausschließlich in die positive c-Richtung wachsen, sondern mit sehr viel geringerer Wachstumsrate auch in die negative c-Richtung, bildet sich ein sogenannter -c-Flügel aus (vgl. hierzu Abb. 5.1). Dieser -c-Flügel ist stark defektbehaftet. Sowohl Versetzungen als auch eine hohe Dichte an Stapelfehlern finden sich konzentriert in diesem Bereich [140–143]. Bei der Koaleszenz der einzelnen Streifen wird der -c-Flügel jedoch vom +c-Flügel des jeweils benachbarten Streifens überwachsen. In diesem Fall enden die Defekte und Stapelfehler an der Grenzfläche zwischen +c- und -c-Flügel, wodurch die Oberfläche der abgeschiedenen GaN-Pufferschichten nicht von der hohen Defektdichte der -c-Flügel beeinträchtigt wird [142]. Die beiden kristallographischen Richtungen, welche die $(1\bar{1}\bar{2}2)$ Wachstumsebene aufspannen, sind $[1\bar{1}\bar{2}3]$ und $[1\bar{1}00]$ (m-Richtung).

Die in diesen Experimenten verwendeten $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten GaN-Pufferschichten stammen aus der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Ferdinand Scholz von der Universität Ulm. Sie wurden mittels SiN_x -Zwischenschichten und anschließender Abscheidung einer dicken

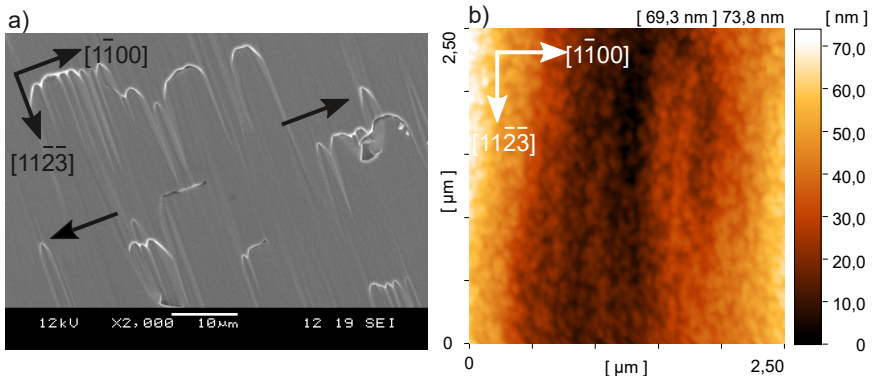


Abbildung 5.2: REM-Aufnahme der Oberfläche der frischen GaN-Schicht, wie sie vor Beginn der Abscheidung des AlInN vorliegt [145]. Die RMS-Rauheit der Oberfläche beträgt im $(2,5 \times 2,5) \mu\text{m}^2$ großen AFM-Bild 15,8 nm.

GaN-Schicht mittels HVPE in Bezug auf eine glatte Oberflächenmorphologie weiterhin optimiert [143]. Die Dichte der Stapelfehler in diesen und vergleichbaren Proben ist mit Werten im Bereich von rund $4,4 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ exzellent [144].

Um bei der Abscheidung des AlInN eine frisch präparierte GaN-Oberfläche anbieten zu können, werden die GaN-Pufferschichten zunächst für 5 min in einer verdünnten Kaliumhydroxidlösung entfettet und von Rückständen auf der Oberfläche befreit. Zu Beginn eines jeden Wachstumsexperiments wird innerhalb von vier Minuten eine frische Belegung der Oberfläche mit GaN abgeschieden. In Abb. 5.2 sind eine REM- (a) und eine AFM-Aufnahme (b) der Oberfläche der GaN-Schicht dargestellt, wie sie vor Beginn der Abscheidung des AlInN während des Wachstumsexperiments vorliegt. Um dies untersuchen zu können wurde ein Wachstumsexperiment nach der Abscheidung der GaN-Belegung abgebrochen und die GaN-Oberfläche mikroskopisch untersucht.

In Abb. 5.2 a) ist deutlich zu erkennen, dass es bei der Koaleszenz der einzelnen Streifen, welche entlang der $[1\bar{1}00]$ -Richtung verlaufen, zu Artefakten in der Oberflächenmorphologie kommt. Es bilden sich ähnlich der V-förmigen Löcher in polaren Schichten trichterförmige Strukturen, welche in einem sehr flachen Winkel die Oberfläche durchlaufen. Die Öffnungswinkel dieser Strukturen betragen nahezu 60° und lassen daher vermuten, dass es sich hierbei tatsächlich um V-förmige Löcher handeln könnte, welche aus Facetten der $\{1\bar{1}01\}$ -Ebenenschar gebildet werden und typischerweise aus polaren GaInN/GaN-Mehrschichtstrukturen und GaInN-Volumenkristallen bekannt sind [114, 146]. Da zu diesen Proben bisher noch keine TEM-Untersuchungen vorliegen, kann nicht mit absoluter

Sicherheit gesagt werden, ob es sich hierbei um V-förmige Löcher handelt, welche durch Durchstoßversetzungen aus dem Unterbau induziert werden. Am Ende dieser Strukturen bilden sich dennoch stabile Facetten aus, welche sich anschließend nicht länger öffnen, sondern streifenähnliche Strukturen entlang der $[11\bar{2}3]$ -Richtung auf der Oberfläche ausbilden. Hierbei müsste es sich folglich um $\{1\bar{1}01\}$ -Facetten handeln. Diese makroskopischen Streifen sind auch in der AFM-Aufnahme mit einer Seitenlänge von $2,5\text{ }\mu\text{m}$ deutlich zu erkennen. Zusätzlich ist eine sehr viel feinkörnigere Struktur auf den makroskopischen Streifen sichtbar. Die RMS-Rauheit ist mit einem Wert von $15,8\text{ nm}$ für die $(2,5 \times 2,5)\text{ }\mu\text{m}^2$ große AFM-Aufnahme aus Abb. 5.2 b) verglichen mit dem Wert von $0,3\text{ nm}$ für c-planare GaN-Pufferschichten aus Abb. 4.2 sehr hoch.

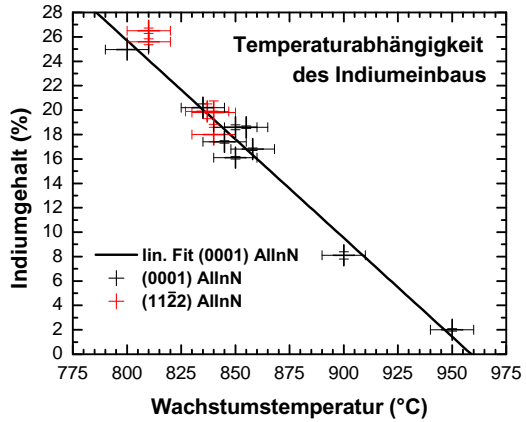
Wie bereits zuvor erläutert, sind die semi-polaren $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten AlInN-Schichten auf dem GaN-Unterbau anisotrop verspannt. Zusätzlich sind aufgrund der unterschiedlichen c/a -Verhältnisse der beteiligten binären Materialien die Zusammensetzungen für eine Gitteranpassung des AlInN in die unterschiedlichen Richtungen der Wachstumsfläche verschieden. Eine Gitteranpassung in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung liegt bei einem Indiumgehalt von 18% vor. Die $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -Ebene des GaN ist gegenüber der (0001) -Ebene um $58,4^\circ$ um die $[1\bar{1}00]$ -Richtung gekippt. Daraus ergibt sich für die Anpassung der Atomabstände des AlInN an die des GaN eine Zusammensetzung in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung von 25,6% Indium.

Da es also zwei unterschiedliche eindimensional gitterangepasste Zustände des AlInN auf $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertem GaN gibt, sollen im Folgenden die Eigenschaften von AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken jeweils für beide Zusammensetzungen diskutiert werden. Zunächst wird untersucht, inwiefern sich die semi-polaren Schichten von den polaren Schichten in Bezug auf das Einbauverhalten von Indium und die Wachstumsraten unterscheiden. Anschließend soll vorgestellt werden, inwiefern sich $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertes AlInN bei der Abscheidung großer Schichtdicken bezüglich der auftretenden Probleme von polarem AlInN unterscheidet oder diesem ähnelt. Anschließend werden erste relaxierte Pufferschichten basierend auf eindimensional gitterangepassten AlInN-Schichten unterschiedlicher Komposition und Schichtdicke vorgestellt.

5.1.1 Der Indiumeinbau für $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertes AlInN

In der Literatur werden die Einbaueffizienzen von Indium in das Materialsystem GaInN auf $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientiertem GaN kontrovers diskutiert. So fanden z. B. Wernicke *et al.* in einer Studie heraus, dass der Indiumeinbau in GaInN auf $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten GaN-Oberflächen ähnlich dem auf c-planaren GaN-Flächen ist [148]. Jönen hingegen kam in seiner Arbeit zu dem Ergebnis, dass der Indiumeinbau in GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen auf der $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -Fläche sehr wohl einen gesteigerten Indiumeinbau in die GaInN-Quantentöpfe

Abbildung 5.3: Die Einbaueffizienz von Indium in das Materialsystem AlInN unterscheidet sich auf der (11 $\bar{2}2$)-Wachstumsfläche nicht von der auf (0001)-orientierten polaren GaN-Flächen. Alle Datenpunkte der in die zwei verschiedenen Richtungen der Wachstumsfläche nominell gitterangepassten AlInN-Schichten passen zu den Datenpunkten polarer Proben. [147]



zeigt [87].

In Abb. 5.3 sind die resultierenden Indiumgehalte unterschiedlich dicker (11 $\bar{2}2$)-orientierter AlInN-Schichten in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur dargestellt (rote Kreuze). Um potentielle Einflüsse anderer Wachstumsparameter wie z. B. dem Reaktordruck, den einzelnen Quellflüssen oder der Wachstumsrate ausschließen zu können, wurden die Proben unter gleichen Bedingungen wie das polare (0001)-orientierte AlInN abgeschieden. Beim Vergleich dieser Datenpunkte mit den resultierenden Indiumgehalten der c-planaren AlInN-Schichten (schwarze Kreuze) fällt auf, dass diese unter Berücksichtigung der Fehler sehr gut auf der Einbaukurve der c-orientierten Schichten liegen. Für das Materialsystem AlInN zeigt sich in unseren Experimenten somit weder ein gesteigerter noch ein verringerter Indiumeinbau auf der semi-polaren (11 $\bar{2}2$)-Fläche. Eine Gitteranpassung des AlInN in m-Richtung des darunterliegenden GaN mit einem Indiumgehalt von 18% wird also bei Wachstumstemperaturen im Bereich von rund 840 °C bis 850 °C erreicht. Eine Anpassung in die [11 $\bar{2}3$]-Richtung mit einem Indiumgehalt von 25,6% wird bei Temperaturen von rund 800 °C erreicht.

5.1.2 Die Oberflächenmorphologie und Wachstumsraten eindimensional gitterangepasster Schichten

In Abb. 5.4 sind die Oberflächenmorphologien von eindimensional gitterangepassten (11 $\bar{2}2$)-orientierten AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken und Richtungen der Gitteranpassung gezeigt. Um eine gute Vergleichbarkeit zu erreichen sind für alle Proben AFM-Aufnahmen mit einer Größe von (5 × 5) μm² gezeigt. Alle sechs Probenoberflächen

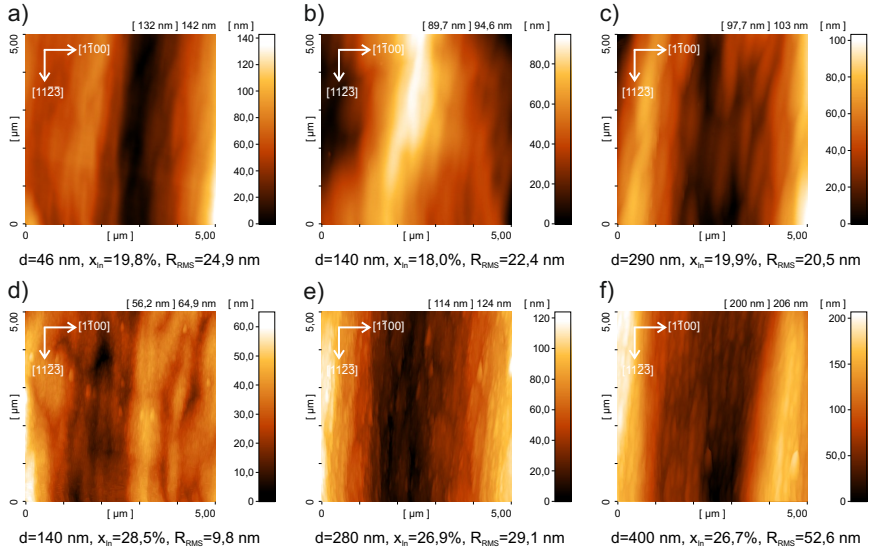


Abbildung 5.4: Illustration der Oberflächenmorphologien unterschiedlicher $(1\bar{1}22)$ -orientierter AlInN-Schichten. In der ersten Zeile (Aufnahmen a-c) werden die Oberflächen nominell in m-Richtung angepasster Proben mit Dicken zwischen 46 nm und 280 nm gezeigt. In der zweiten Zeile (Aufnahmen d-f) sind die Oberflächen in $[11\bar{2}3]$ angepasster Proben mit Schichtdicken zwischen 140 nm und 400 nm zu sehen.

zeichnen sich durch eine starke Höhenmodulation in Richtung $[1\bar{1}00]$ aus. Diese makroskopische Höhenmodulation stammt aus dem GaN-Unterbau und wurde bereits in Abb. 5.2 vorgestellt. Es handelt sich hierbei um Streifenstrukturen aufgrund von Oberflächendefekten, welche an den Koaleszenzkannten des darunter liegenden GaN entstehen. Mikroskopisch unterscheiden sich die Oberflächen der in $[1\bar{1}00]$ - (Aufnahmen a-c) und $[11\bar{2}3]$ -Richtung angepassten Schichten (Aufnahmen d-f) in einer etwas feinkörnigeren Oberflächenmorphologie für die letztere der beiden Anpassungsrichtungen. Die leicht erhöhte Feinkörnigkeit der $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben hängt höchstwahrscheinlich nur indirekt mit dem höheren Indiumgehalt zusammen. Wie in Abschnitt 5.1.1 vorgestellt, wird auch im Fall der semipolaren Schichten der Indiumgehalt ausschließlich über die Wachstumstemperatur eingestellt. Da die Temperaturen für eine Anpassung in $[11\bar{2}3]$ -Richtung mit rund 25,6% Indium im Bereich von 800 °C noch einmal rund 50 °C geringer sind als im Fall der Anpassung an die m-Richtung, mag der geringe Unterschied in der Oberflächenmorphologie auf die verringerte Wachstumstemperatur zurückzuführen sein.

Sowohl für die nominell in $[1\bar{1}00]$ als auch für die nominell in $[11\bar{2}3]$ gitterangepassten

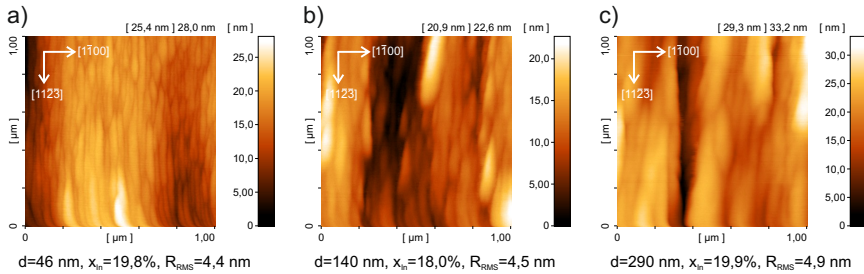


Abbildung 5.5: Darstellung der Oberflächen der in $[11\bar{2}3]$ gitterangepassten Proben mit Schichtdicken zwischen 140 nm und 400 nm mit einer Größe von $(1 \times 1) \mu\text{m}^2$. Die RMS-Rauheiten sind sich nun nicht nur sehr viel ähnlicher, sondern nahezu identisch.

Proben lässt sich mit bloßem Auge nicht beurteilen, welche der Proben glatter bzw. rauher ist. Bei Betrachtung der RMS-Rauheiten der Aufnahmen a) bis c) fällt auf, dass diese mit Werten von 24,9 nm, 22,4 nm bzw. 20,5 nm sehr ähnlich sind. Tatsächlich nimmt die RMS-Rauheit mit zunehmender Schichtdicke sogar ab. Für die in $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben aus den Abbildungen d) bis f) nimmt die RMS-Rauheit mit zunehmender Schichtdicke zu. So zeigen die rund 140 nm, 280 nm und 400 nm dicken Schichten RMS-Rauheiten von 9,8 nm, 29,1 nm und 52,6 nm. Im Gegensatz zu den *c*-orientierten Schichten, welche für große Schichtdicken oberhalb von 200 nm signifikant aufrauen, ist dies hier nicht der Fall. Die mikroskopische Oberflächenbeschaffenheit der Proben ändert sich nicht signifikant mit der Schichtdicke. Viel eher ist es wahrscheinlich, dass die Zunahme der RMS-Rauheiten in diesem Fall von der makroskopischen Struktur der Oberfläche beeinflusst wird. Beim Vergleich der Aufnahmen e) und f) fällt auf, dass beide von einem tiefen Graben in der Mitte des Bildes geprägt sind. Die Höhenskalen beider Aufnahmen und damit die Tiefe der Gräben unterscheiden sich beträchtlich. Im Fall von Aufnahme e) beträgt die Höhenskala 124 nm, wohingegen sie im Fall von Aufnahme f) einen Wert von 206 nm besitzt.

Hier wird ein zentrales Problem der Analyse von Oberflächenrauheiten mittels der RMS-Rauheit sichtbar. Unterscheiden sich zwei Oberflächen makroskopisch voneinander, so sind auch die RMS-Rauheiten nicht länger miteinander vergleichbar. Nur wenn die Größe des Bildausschnitts und die makroskopische Struktur zweier Oberflächen miteinander vergleichbar sind, können auch die RMS-Rauheiten miteinander verglichen werden. Da im Fall der Aufnahmen d) bis f) bereits die Höhenskalen der einzelnen Bilder stark zunehmen, nehmen auch die RMS-Rauheiten mit diesen zu.

Um dieses Problem noch weiter zu verdeutlichen, sind in Abb. 5.5 noch einmal die Oberflächen der drei zuvor vorgestellten Proben aus Abb. 5.4 d) bis f) mit kleineren Bildausschnitt-

ten von $(1 \times 1) \mu\text{m}^2$ gezeigt. Da die makroskopische Höhenmodulation der Oberflächen in diesem Fall keinen so großen Einfluss mehr besitzt, sind die Höhenskalen der drei Aufnahmen in diesem Fall mit Werten von 28,0 nm, 22,6 nm bzw. 33,2 nm einander sehr viel ähnlicher. Auch die RMS-Rauheiten sind nun mit Werten von 4,4 nm, 4,5 nm und 4,9 nm nahezu identisch. Von einer starken Aufrauung der Oberfläche wie im Fall der c -orientierten Schichten kann hier also nicht ausgegangen werden. Weder die nominell in $[1\bar{1}00]$, noch die in $[11\bar{2}3]$ angepassten AlInN-Schichten zeigen Anzeichen für eine Aufrauung bei der Überschreitung einer Schichtdicke im Bereich von 200 nm. Die mikroskopischen, in $[11\bar{2}3]$ elongierten Strukturen müssen dem AlInN zugeschrieben werden, da diese im Fall der reinen GaN-Oberfläche noch nicht zu beobachten sind (vgl. hierzu Abb. 5.2).

Wie in Abb. 5.6 (links) zu erkennen ist, werden aufgrund der Oberflächenrauheit keine Schichtdickenoszillationen in den symmetrischen Röntgenprofilen ausgebildet. Aus diesem Grund müssen die Schichtdicken und damit die Wachstumsraten der $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten Schichten auf anderem Wege bestimmt werden. In Abb. 5.6 (rechts) ist eine mittels Rasterelektronenmikroskopie aufgenommene Querschnittsaufnahme einer nominell 280 nm dicken AlInN-Schicht gezeigt. Durch den unterschiedlichen Kontrast von AlInN und GaN ist es möglich, die beiden Schichten zu unterscheiden und somit die Schichtdicke zu bestimmen. Auf diesem Wege ergibt sich für diese Schicht eine Dicke von rund 270 nm bis 290 nm. Hieraus resultiert mit einer Wachstumszeit von 140 min eine Wachstumsrate von $1,93 \text{ nm min}^{-1}$ bis $2,07 \text{ nm min}^{-1}$. Somit sind die Wachstumsraten von polaren c -orientierten und semi-polaren $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierten AlInN-Schichten unter gleichen Wachstumsbedingungen quasi identisch.

Diese die Oberflächenmorphologie sehr dicker $(1\bar{1}\bar{2}2)$ -orientierter AlInN-Schichten betreffenden Ergebnisse sind sehr vielversprechend, wenn es darum geht, die aktuellen AlGaIn-basierten Mantelschichten und Elektronenbarrieren auch in semi-polaren Strukturen und Bauelementen durch AlInN zu ersetzen. Zusammen mit dem Problem der starken Aufrauung der Oberflächen nominell gitterangepasster AlInN-Schichten hin zu großen Schichtdicken, ging im Fall der c -orientierten Proben zusätzlich eine Aufspaltung der Zusammensetzung einher. Daher soll im Folgenden das Verhalten eindimensional gitterangepasster Schichten bezüglich der Zusammensetzung anhand von Röntgenmessungen an unterschiedlichen Reflexen vorgestellt werden. Da es sich bei den vorgestellten Schichten um eindimensional gitterangepasste Schichten handelt, soll ebenfalls das Relaxationsverhalten dieser Schichten für unterschiedliche Richtungen der Gitteranpassung näher beleuchtet werden.

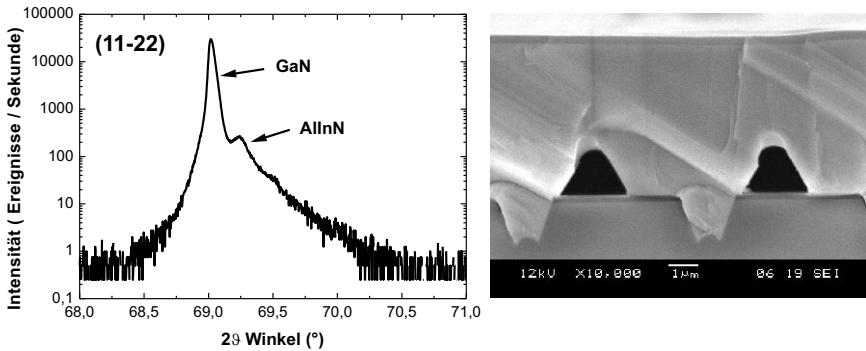


Abbildung 5.6: In den symmetrischen Röntgenmessungen am $(11\bar{2}2)$ -Reflex (links) sind aufgrund der Oberflächenrauheit keine Schichtdickenoszillationen erkennbar. Aus REM-Querschnittsaufnahmen (rechts, [149]) können die Schichtdicken dennoch bestimmt werden. Hier sind es 270 nm bis 290 nm. Mit einer Wachstumszeit von 140 min errechnet sich die mittlere Wachstumsrate zu $2,0 \text{ nm min}^{-1}$, und ist somit identisch mit der Wachstumsrate von polaren c-orientierten Schichten.

5.1.3 Das Relaxationsverhalten eindimensional gitterangepasster AlInN-Schichten

In Abb. 5.7 sind die reziproken Gitterkarten von drei nominell in $[1\bar{1}00]$ angepassten AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken dargestellt. In der ersten Spalte werden die Gitterkarten einer rund 46 nm dicken AlInN-Schicht mit einem Indiumgehalt von 19,8% dargestellt. Die zweite Spalte zeigt die Aufnahmen einer etwa 140 nm dicken Schicht mit 18,0% Indium. Die Gitterkarten in der letzten Spalte gehören zu einer nominell 290 nm dicken Schicht mit 19,9% Indium. In den ersten beiden Zeilen sind die reziproken Gitterkarten am symmetrischen $(11\bar{2}2)$ -Reflex in zwei unterschiedlichen Konfigurationen gezeigt. In den Messungen der ersten Zeile liegt die Projektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zur $[11\bar{2}3]$ -Richtung in der Oberfläche. Die zweite Zeile zeigt die reziproken Gitterkarten des symmetrischen $(11\bar{2}2)$ -Reflexes mit einer Oberflächenprojektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zur $[1\bar{1}00]$ -Richtung. Im Fall reziproker Gitterkarten an symmetrischen Reflexen können aus den Peaklagen neben den Gitterkonstanten und Schichtdicken in Wachstumsrichtungen mögliche Verkippungen der unterschiedlichen Schichten zueinander abgelesen werden. Aus den Messungen am (0006) -Reflex können aus den Werten für Q_{\parallel} und Q_{\perp} Informationen über die Gitterkonstanten und Verspannungszustände in die $[11\bar{2}2]$ - bzw. $[11\bar{2}3]$ -Richtungen erhalten werden. Da es sich bei dem $(20\bar{2}2)$ -Reflex um eine Linearkombination aus der Wachstumsrichtung und der m-Richtung handelt, können aus diesen Messungen die Gitterkonstanten und Verspannungszustände in Wachstums- und in

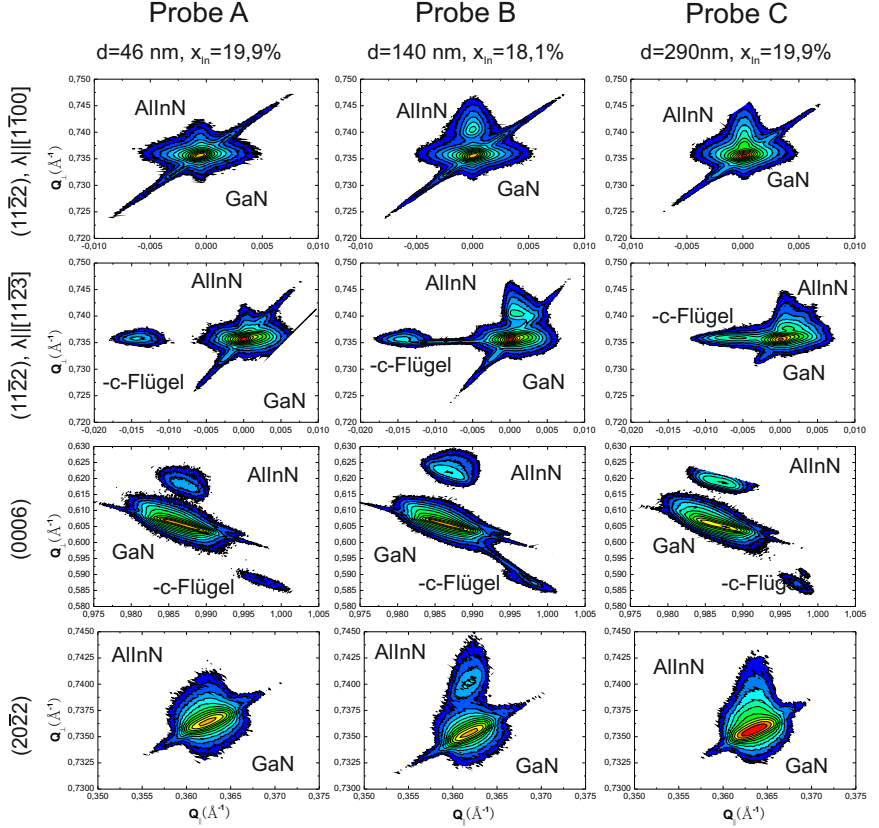


Abbildung 5.7: Reziproke Gitterkarten an den $(11\bar{2}2)$ -, (0006) - und $(20\bar{2}2)$ -Reflexen der nominell in $[1\bar{1}00]$ gitterangepassten Proben. Die Gitterkarte am symmetrischen $(11\bar{2}2)$ -Reflex ist jeweils einmal mit einem parallel zu $[1\bar{1}00]$ bzw. $[1\bar{1}23]$ einfallenden Röntgenstrahl dargestellt. [150]

m-Richtung bestimmt werden.

Aus diesen Messungen sind schließlich die Gitterkonstanten und Verspannungszustände der einzelnen Schichten in die Wachstumsrichtung - hier also $[1\bar{1}2\bar{2}]$ - und die beiden unterschiedlichen Richtungen innerhalb der Wachstumsebene - hier $[11\bar{2}3]$ und $[1\bar{1}00]$ - bekannt. Bei den hier vorgestellten Gitterkarten handelt es sich bei weitem nicht um alle gemessenen Reflexe. Zur Bestimmung der Gitterkonstanten in die unterschiedlichen Richtungen des Kristalls wurden noch weitere Messungen durchgeführt. Auf diese soll an dieser Stelle jedoch nicht weiter eingegangen werden, da sie für die weitere Diskussion keine zusätzlichen Informationen bringen.

In den symmetrischen Gitterkarten ist aufgrund der Lage des AlInN-Peaks bei größeren Winkeln klar zu erkennen, dass die Gitterkonstante des AlInN in Wachstumsrichtung kleiner ist als die des GaN. Da die Schichten in $[1\bar{1}00]$ -Richtung gitterangepasst sind und daher in c- bzw. in $[11\bar{2}3]$ -Richtung kleinere Atomabstände als das GaN aufweisen, sind die Netzebenenabstände in Wachstumsrichtung nicht nur freistehend kleiner, sondern aufgrund der tensilen Spannung in $[11\bar{2}3]$ auch noch zusätzlich gestaucht. Aus den reziproken Gitterkarten am symmetrischen Reflex mit einer Projektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zur $[1\bar{1}00]$ -Richtung ist zu erkennen, dass alle drei Proben mit Schichtdicken zwischen 46 nm und 290 nm in diese Richtung unverkippt auf dem GaN aufwachsen. Dies ist im Fall der zu dieser Orientierung senkrecht gemessenen Gitterkarten anders. In den Gitterkarten des symmetrischen Reflexes mit einer Projektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zur $[11\bar{2}3]$ -Richtung ist zu erkennen, dass die Peaks der AlInN-Schichten nicht länger senkrecht über denen des GaN liegen. Die AlInN-Schichten sind also in Richtung $[11\bar{2}3]$ gegenüber der GaN-Schichten verkippt. Der Verkipfungswinkel zwischen der AlInN- und der GaN-Schicht nimmt mit der Schichtdicke des AlInN zu. Im Fall der nominell 46 nm dicken AlInN-Schicht mit einem Indiumgehalt von 19,8% beträgt der Verkipfungswinkel $0,049^\circ$. Für die Schicht mit einer Dicke von 140 nm und einem Indiumgehalt von 18,0% beträgt die Verkippfung bereits $0,058^\circ$. Bei einer Schichtdicke von 290 nm und einem Indiumgehalt von 19,9% hat die Verkippfung schließlich einen Wert von $0,075^\circ$.

Diese Verkippfung von semi-polarem ($11\bar{2}2$)-orientiertem Material in $[11\bar{2}3]$ wurde bereits von Tyagi *et al.* und Young *et al.* für die Materialsysteme GaInN und AlGaIn beobachtet [151, 152]. Die Verkippfung ist auf eine Generierung von Gitterfehlانpassungsversetzungen an der Grenzfläche zurückzuführen [48, 151, 152]. Hierbei gleiten Durchstoßversetzungen in der Basal-Ebene zur Grenzfläche, wodurch sich dort Gitterfehlانpassungsversetzungen bilden können, welche zum Abbau der Verspannung in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung beitragen. Mit dieser Relaxation geht dann wiederum die Verkippfung der Schicht in diese Richtung einher.

Zusätzlich zu den zum GaN bzw. AlInN gehörigen Peaks sind in den reziproken Gitterkarten mit einer Projektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zu $[11\bar{2}3]$ weitere Peaks

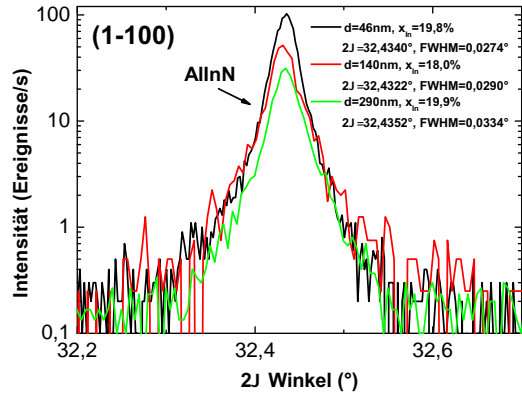
erkennbar. Hierbei handelt es sich höchstwahrscheinlich um die Reflexe der -c-Flügel des darunter liegenden GaN. Bei den -c-Flügeln handelt es sich wie bereits erwähnt um einen kleinen Teil der GaN-Streifen, welcher in negative c-Richtung aus den geätzten Gräben des Saphirsubstrats herauswächst. Diese Bereiche der GaN-Streifen sind hochgradig mit Defekten belastet und sind in Bezug zum Großteil der GaN-Streifen um rund $1,1^\circ$ verkippt. Woher die Verkipfung der -c-Flügel stammt ist bisher noch nicht abschließend geklärt. Zum einen rührt sie sicherlich aus der hohen Dichte von Defekten her, zum anderen ist auch eine mechanische Verkipfung der -c-Flügel durch den Druck, welchen die +c-Flügel bei der Koaleszenz auf diese ausüben, denkbar. Da die -c-Flügel jedoch während des Wachstums des AlInN keine Rolle spielen und das Wachstum der $(1\bar{1}22)$ -orientierten GaN Schichten keinen zentralen Punkt dieser Arbeit darstellt, sollen sie im Weiteren nicht weiter von Interesse sein.

In der reziproken Gitterkarte am (0006) -Reflex der dünnen Probe mit einem Indiumgehalt von 19,8% ist lediglich ein symmetrischer Peak des AlInN zu sehen. Das AlInN hat in diesem Fall eine Peaklage bei größeren Winkeln. Analog zur Wachstumsrichtung resultiert diese kleinere Gitterkonstante in $[0001]$ -Richtung aus den kleineren Atomabständen in $[1\bar{1}23]$ und die damit einhergehende Stauchung der Einheitszelle aufgrund tensiler Verspannung in der Ebene. Bereits bei der Probe mit einer Schichtdicke von nominell 140 nm ist eine Asymmetrie des AlInN-Peaks zu erkennen. Dies spricht dafür, dass es aufgrund einer Relaxation der Schicht zu einer Verschiebung der Peaklage kommt. Hierfür spricht ebenfalls der gesteigerte Verkipfungswinkel in der symmetrischen Gitterkarte. Durch die Relaxation in der Wachstumsebene in $[1\bar{1}23]$ verkleinern sich die Atomabstände in der Ebene. Damit nimmt die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung und damit auch in c-Richtung zu. Der Peak des AlInN verschiebt sich damit zum Peak des GaN. Für die dickste der drei Proben ist die reziproke Gitterkarte leider ein wenig klein gewählt worden, sodass die Asymmetrie des Peaks nicht ausreichend beurteilt werden kann. Dennoch ist zu erwarten, dass auch hier eine weitere Verschiebung des AlInN-Peaks hin zum Peak des GaN stattgefunden hat. Beim Vergleich der drei Gitterkarten fällt auf, dass der AlInN-Peak in Bezug zum GaN-Peak nun leicht nach links verschoben ist, wohingegen der Peak im Fall der anderen beiden Proben leicht auf der rechten Seite des GaN lag.

Betrachten wir zuletzt das Relaxationsverhalten der Proben in die zweite die Wachstumsoberfläche aufspannenden Richtungen. In der letzten Zeile von Abb. 5.7 sind die asymmetrischen $(20\bar{2}2)$ Gitterkarten aller drei nominell in $[1\bar{1}00]$ angepasster Proben gezeigt. In dieser Art von Gitterkarte ist wieder Q_\perp ein Maß für die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung, aus Q_\parallel kann die Gitterkonstante in $[1\bar{1}00]$ bestimmt werden.

Da es sich bei den hier betrachteten Proben um nominell in $[1\bar{1}00]$ angepasste Proben handelt, ist keine Relaxation in diese Richtung zu erwarten. Für alle drei Proben haben jeweils

Abbildung 5.8: Gemeinsame Darstellung der *in-plane* Messungen am (1 $\bar{1}$ 00)-Reflex aller drei nominell in [1 $\bar{1}$ 00] angepasster Proben. Die Peaklagen sind mit Werten von 32,4340°, 32,4322° und 32,4352° quasi exakt identisch. Auch die Halbwertsbreiten unterscheiden sich mit Werten von 0,0274°, 0,0290° und 0,0334° um maximal 0,006° voneinander. [153]



der Reflex des AlInN und der des GaN gleiche Werte für Q_{\parallel} . Dies bedeutet, dass die Netzebenenabstände in [1 $\bar{1}$ 00] identisch sind. In diesem Fall kann nicht zwischen vollverspannt und vollständig relaxiert unterschieden werden, da die Gitterfehlانpassung gleich Null ist. Die Werte für Q_{\perp} unterscheiden sich sowohl für die jeweiligen AlInN- bzw. GaN-Peaks als auch von Probe zu Probe. Dies rührt daher, dass nicht alle drei Proben exakt gitterangepasst sind. Lediglich die Probe mit einer nominellen Schichtdicke von 140 nm trifft die Zusammensetzung für eine Gitteranpassung in [1 $\bar{1}$ 00] exakt. Sowohl die dünnere als auch die dickere Probe haben einen geringfügig zu hohen Indiumgehalt. Daher sind diese im Vergleich in [11 $\bar{2}$ 3] etwas weniger stark tensil verspannt und stehen zusätzlich in [1 $\bar{1}$ 00] unter leicht kompressiver Verspannung. Aus diesen beiden Gründen sind die Einheitszellen dieser beiden Proben in Wachstumsrichtung weniger stark gestaucht, wodurch sie weiter in Richtung kleiner Winkel schieben und damit näher am Reflex des GaN liegen.

Dass sich die Proben in [1 $\bar{1}$ 00] nicht voneinander unterscheiden, ist auch sehr gut in den *in-plane* Messungen am (1 $\bar{1}$ 00)-Reflex zu erkennen. Die *in-plane* Messungen aller drei nominell in [1 $\bar{1}$ 00] angepasster Proben sind in Abb. 5.8 gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Peaks nicht in ihrer Peaklage unterscheiden und auch die Halbwertsbreiten nahezu exakt identisch sind. Alle drei Proben sind somit absolut pseudomorph auf dem GaN-Unterbau aufgewachsen und zeigen keinerlei Relaxation in [1 $\bar{1}$ 00]. Diese Ergebnisse zeigen, dass [1 $\bar{1}$ 00] angepasstes AlInN auf GaN-Unterbauten nur in [11 $\bar{2}$ 3]-Richtung relaxiert.

Neben der oben diskutierten Relaxation der [1 $\bar{1}$ 00] angepassten Schichten lässt sich noch ein weiteres Ergebnis aus den reziproken Gitterkarten ablesen. Auch 290 nm dicke AlInN-Schichten zeigen keine Anzeichen für eine Kompositionsaufspaltung. Die Asymmetrien mancher AlInN-Peaks in den Gitterkarten lassen sich mit einer Relaxation der Schicht in

die $[11\bar{2}3]$ -Richtung erklären. Es sind in keiner Messung, ob Gitterkarte oder Einzelmessung, Doppelpeaks für das AlInN zu erkennen. Es kann also davon ausgegangen werden, dass auch 290 nm dicke $[1\bar{1}00]$ angepasste Schichten keiner Aufspaltung der Komposition unterliegen. Zusammen mit der nicht vorhandenen Aufräumung der $(1\bar{1}22)$ -orientierten AlInN-Schichten für große Schichtdicken sind dies sehr vielversprechende Ergebnisse.

Bisher wurden lediglich $[1\bar{1}00]$ angepasste AlInN-Schichten betrachtet. Im Folgenden sollen daher die senkrecht dazu gitterangepassten Schichten mit einer nominell angestrebten Zusammensetzung von 25,6% vorgestellt werden. Analog zu Abb. 5.7 sind in Abb. 5.9 die äquivalenten reziproken Gitterkarten der in $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben gezeigt. Wie in den reziproken Gitterkarten am symmetrischen $(1\bar{1}22)$ -Reflex der ersten beiden Zeilen klar zu erkennen ist, liegen die Peaks des AlInN für die in $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben nun bei kleineren Winkeln als die Peaks der GaN-Schicht und weisen somit in Wachstumsrichtung eine größere Gitterkonstante als das GaN auf. Hierfür gibt es zwei Ursachen. Zum einen ist die freistehende Einheitszelle des AlInN aufgrund des erhöhten Indiumgehalts nun in a -Richtung größer als die des GaN, woraus auch für die $(1\bar{1}22)$ -Netzebenen ein größerer Abstand resultiert. Zum anderen kommt es durch die kompressive Verspannung in der Wachstumsebene in $[1\bar{1}00]$ zu einer weiteren Dehnung der Einheitszelle in $[11\bar{2}2]$, da bekanntlich in Wachstumsrichtung keine Kraft auf eine Epitaxieschicht wirkt.

In den Gitterkarten der ersten Zeile von Abb. 5.9 sind die symmetrischen Messungen mit einer Projektion des einfallenden Röntgenstrahls parallel zur $[1\bar{1}00]$ -Richtung gezeigt. Die AlInN-Peaks liegen in diesen Messungen senkrecht unter den Peaks des GaN. Es ist also ähnlich dem Fall der $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben keine Verkipfung der Schichten in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu erkennen. Dies ändert sich jedoch in den senkrecht dazu gemessenen Gitterkarten. Obwohl die Schichten nominell in $[11\bar{2}3]$ gitterangepasst sind, weisen alle drei Proben eine Verkipfung des AlInN gegenüber der darunterliegenden GaN-Schicht in $[11\bar{2}3]$ auf. Eine solche Verkipfung geht für das Materialsystem GaInN jedoch nur mit einer Relaxation in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung einher [48, 151, 152]. Daher liegt die Vermutung nahe, dass trotz der Gitteranpassung des AlInN in diese Richtung eine Relaxation in die gleiche Richtung stattfindet.

Bei der Auswertung der Verkipfungswinkel fällt auf, dass diese nicht wie im Fall der $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben schichtdickenabhängig sind und monoton mit der Schichtdicke zunehmen, sondern dass alle drei ganz ähnliche Werte haben und keinen klaren Trend zeigen. Die Verkipfungswinkel für die 140 nm, 280 nm und 400 nm dicken AlInN-Schichten betragen $0,076^\circ$, $0,089^\circ$ bzw. $0,078^\circ$. Die Verkipfung und damit die Relaxation in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung scheint für das AlInN also nicht schichtdickenabhängig zu sein.

Eine mögliche Erklärung für die trotz der Gitteranpassung auftretenden Verkipfungen des AlInN ist, dass die Verspannungsenergie der kompressiven Verspannung in $[1\bar{1}00]$ über eine

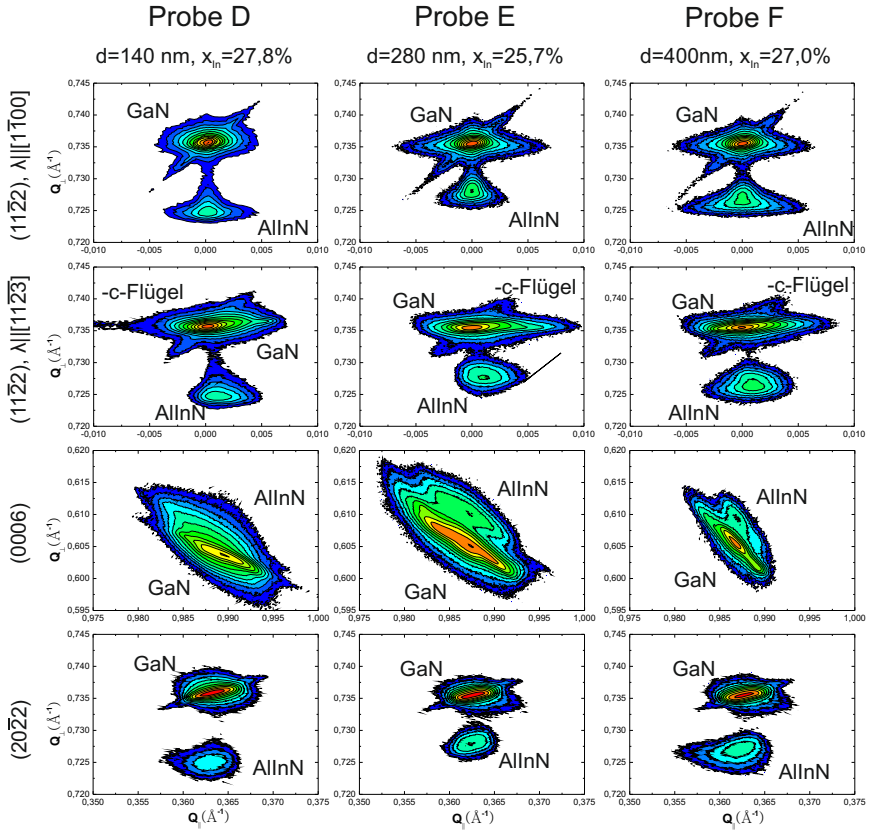


Abbildung 5.9: Reziproke Gitterkarten an den $(11\bar{2}2)$ -, (0006) - und $(20\bar{2}2)$ -Reflexen der nominell in $[11\bar{2}3]$ gitterangepassten Proben. Die Gitterkarte am symmetrischen $(11\bar{2}2)$ -Reflex ist jeweils einmal mit einem parallel zu $[1\bar{1}00]$ bzw. $[1\bar{1}\bar{2}3]$ einfallenden Röntgenstrahl dargestellt. [154]

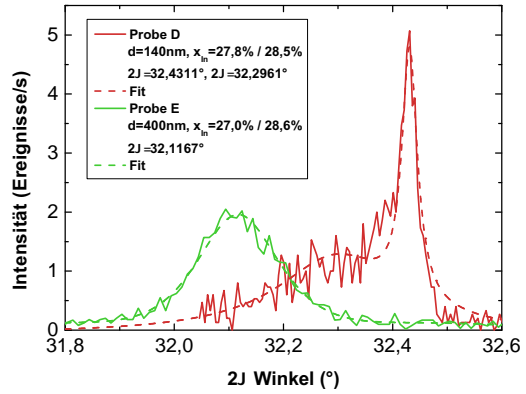
Ausdehnung der Einheitszelle in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung abgebaut wird. Für die Gruppe-III-Nitride ist die Basalfläche die bevorzugte Gleitebene [48]. Daher ist es naheliegend, dass der Verspannungsabbau in $[11\bar{2}3]$ über ein Gleiten von Versetzungen bis hin zur Grenzfläche eine so viel geringere Aktivierungsenergie benötigt als mögliche Relaxationsmechanismen in die dazu senkrechte Richtung, dass dieser trotz der Gitteranpassung in diese Richtung bevorzugt aktiviert wird.

Des Weiteren fällt bei der Betrachtung der symmetrischen reziproken Gitterkarten auf, dass die -c-Flügel der letzten beiden 280 nm und 400 nm dicken Proben in die entgegengesetzte Richtung kippen. Zusätzlich sind die -c-Flügel in diesen Proben wesentlich weniger deutlich ausgeprägt. Da auch die $(1\bar{1}22)$ -orientierten GaN-Puffer zum Zeitpunkt dieser Experimente noch unter ständiger Weiterentwicklung standen und diese Proben auf unterschiedlichen Substraten bzw. Templaten abgeschieden wurden, ist dies nicht weiter verwunderlich. Eine mögliche Erklärung für das entgegengesetzte Verkippen der -c-Flügel in den letzten beiden Proben ist ein unterschiedlicher Offcut des Saphir-Substrats. Über diesen kann die Verkipfung der einzelnen GaN-Streifen mit Bezug zur Saphir-Oberfläche eingestellt werden [155]. Haben die GaN-Streifen in Bezug zur Saphiroberfläche eine andere Orientierung, könnte auch das Verhalten der -c-Flügel davon beeinflusst werden.

Während die Reflexe der AlInN- und GaN-Schichten der $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben in den Gitterkarten am (0006) -Reflex sehr deutlich voneinander zu unterscheiden waren, sind sie bei den $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben kaum voneinander zu unterscheiden. Dies ist ein klares Indiz für unterschiedliche (0006) -Netzebenenabstände im Fall der $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben und spricht für nahezu identische Gitterabstände der (0006) -Ebenen der $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben. Da zwischen der $[11\bar{2}3]$ - und der $[0006]$ -Richtung im Fall von GaN lediglich ein Winkel von rund $11,6^\circ$ liegt, ist dies bereits ein gutes Maß für das Verhalten der Schichten in $[11\bar{2}3]$. Ebenfalls fällt auf, dass sich die Peaks von AlInN und GaN für die erste der drei Proben quasi nicht voneinander unterscheiden lassen, wohingegen die Peaks der anderen beiden Proben geringfügig aus dem Peak des GaN ragen. Da die erste der drei Proben mit einem Indiumgehalt von 27,8% sehr nahe an den Indiumgehalt für eine Gitteranpassung in c-Richtung herankommt, sind die freistehenden Gitterkonstanten für das AlInN und GaN identisch. Die beiden anderen Proben liegen mit ihren Indiumgehalten jeweils zu niedrig für eine Anpassung der c-Gitterkonstante. Aus diesem Grund sind die c-Gitterkonstanten der AlInN-Schichten in beiden Fällen geringfügig kleiner, wodurch die Peaks der AlInN-Schichten über den Peaks der GaN-Schichten liegen.

Zuletzt sollen noch die reziproken Gitterkarte am $(20\bar{2}2)$ -Reflex vorgestellt werden. Hier sind Q_\perp und Q_\parallel ein Maß für die Gitterkonstanten und Netzebenenabstände in die $[11\bar{2}2]$ - und $[1\bar{1}00]$ -Richtungen, also ein Maß für die Netzebenenabstände in die Wachstumsrichtung und in die m-Richtung in der Wachstumsfläche. Für alle drei Proben liegen die Peaks

Abbildung 5.10: *In-plane* Messungen am $(1\bar{1}00)$ -Reflex der 140 nm und 400 nm dicken nominell in $[11\bar{2}3]$ angepassten AlInN-Schichten. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Hauptpeak der dünneren Probe eine starke Asymmetrie hin zu kleineren Winkeln aufweist. Die dickere der beiden Schichten scheint innerhalb der Eindringtiefe bereits stark relaxiert zu sein. [156]



des AlInN direkt unter den GaN-Peaks. Dies deutet auf größere Netzebenenabstände des AlInN gegenüber des GaN in Wachstumsrichtung hin, wie es bereits auch die symmetrischen Messungen gezeigt haben. Da die Proben eine Gitteranpassung in $[11\bar{2}3]$ besitzen und in $[1\bar{1}00]$ stark kompressiv verspannt sind, sollte mit einer Relaxation in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu rechnen sein. Aus diesem Grund ist es nicht zu erwarten gewesen, dass die AlInN- bzw. GaN-Peaks jeweils einer Probe gleiche Werte für Q_{\parallel} besitzen. Die Asymmetrien der AlInN-Peaks lassen jedoch eine Relaxation erahnen. Die Peaks der 140 nm und 400 nm dicken Proben sind deutlich zu kleineren Werten von Q_{\parallel} verbreitert. Dies spricht für eine Relaxation hin zu größeren Netzebenenabständen, wie es für die Relaxation einer kompressiven Verspannung in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu erwarten gewesen ist.

Im Fall der Messungen am $(20\bar{2}2)$ -Reflex ist die Eindringtiefe des Röntgenstrahls so hoch, dass die AlInN-Schichten vollständig durchdrungen werden. Daher sind auch die GaN-Peaks in den entsprechenden Messungen noch sichtbar. Aus diesem Grund macht sich ein zunehmender Relaxationsgrad der Schichten in Wachstumsrichtung durch eine Asymmetrie des entsprechenden Peaks bemerkbar. Da mit abnehmendem Winkel zwischen dem einfallenden Röntgenstrahl und der Probenoberfläche ebenfalls die Eindringtiefe des Röntgenstrahls abnimmt, ist es möglich, Messungen durchzuführen, welche oberflächensensitiver sind. Hierzu können im vorliegenden Fall die *in-plane*-Messungen am $(1\bar{1}00)$ -Reflex herangezogen werden.

In Abb. 5.10 sind *in-plane*-Messungen am $(1\bar{1}00)$ -Reflex der beiden 140 nm und 400 nm dicken AlInN-Schichten gezeigt. Da die $(1\bar{1}00)$ -Ebenen senkrecht in der Probe stehen, dringt der Röntgenstrahl in diesen Untersuchungen nahezu parallel zur Oberfläche in die Probe ein. In Wirklichkeit wird ein Winkel im Bereich von $\leq 5^\circ$ gewählt, da der Röntgenstrahl sonst nicht in die Probe eindringen würde und somit keine Messungen möglich wären. Durch

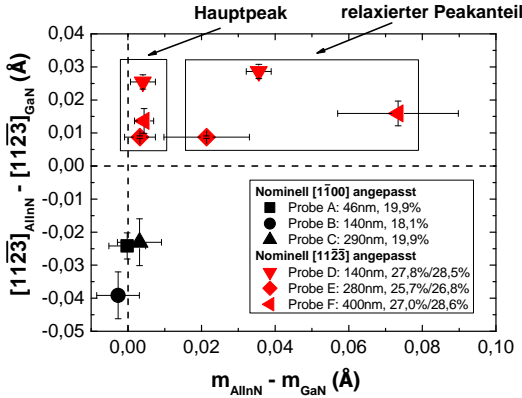


Abbildung 5.11: Unterschiede der Netzeben- bzw. Atomabstände der GaN-Puffer und der darauf abgeschiedenen AlInN-Schichten in $[1\bar{1}00]$ und $[11\bar{2}3]$. Bei den horizontalen bzw. vertikalen gestrichelten Linien handelt es sich um Nulllinien. Dies bedeutet, dass Punkte auf diesen Linien gleiche Gitterparameter in die entsprechende Richtung haben. Positive Werte bedeuten eine größere Gitterkonstante des AlInN, negative eine kleinere. [157]

die sehr geringe Eindringtiefe des Röntgenstrahls ist es möglich, die Gitterkonstanten der Schichten nahe der Oberfläche zu untersuchen. Es ist deutlich zu erkennen, dass das gemessene Röntgenprofil der 140 nm dicken Schicht aus einem scharfen Hauptpeak besteht, welcher eine starke Asymmetrie hin zu kleineren Winkeln zeigt. Es ist davon auszugehen, dass sich hier die beginnende Relaxation innerhalb der Schicht zeigt. Um das Profil dieser Messung durch einen Fit mittels Pseudo-Voigt-Funktionen anzupassen, wurde von einem Doppelpeak ausgegangen. Es zeigt sich, dass der Hauptbestandteil dieses Peaks mit einer Peaklage von $2\vartheta = 32,4311^\circ$ sehr nah an dem zu erwartenden Wert von $2\vartheta = 32,3893^\circ$ für die freistehende Gitterkonstante von GaN in $[1\bar{1}00]$ -Richtung liegt. Es handelt sich hierbei also mit größter Wahrscheinlichkeit um vollverspanntes AlInN. Die starke Asymmetrie wurde mit einer Peaklage von $2\vartheta = 32,2961^\circ$ angepasst. Wenn es sich um eine fortschreitende Relaxation im Verlauf der Schicht handelt, ist es physikalisch nicht unbedingt sinnvoll diese Asymmetrie mit nur einem Peak anzunähern. In diesem Fall müsste eher von einer stetigen Verschiebung der Peaklage ausgegangen werden. Dennoch zeigt die Asymmetrie des Peaks, dass es Anteile in der Schicht geben muss, welche eine größere Gitterkonstante in der Wachstumsebene aufweisen - also relaxiert sind.

Noch deutlicher wird diese Tatsache bei Betrachtung der Messung an der 400 nm dicken Probe. Hier ist wieder nur ein einzelner recht symmetrischer Peak zu sehen, welcher mit einer Peaklage von $2\vartheta = 32,1167^\circ$ bei einem deutlich kleineren Winkel liegt. Die Erklärung hierfür ist, dass durch die große Schichtdicke von 400 nm nun so viel relaxiertes Material abgeschieden wurde, dass die Eindringtiefe des Röntgenstrahls nicht länger ausreicht, um das tieferliegende vollverspannte Material sichtbar zu machen. Es wird also nur relaxiertes AlInN mit einer größeren Gitterkonstante in der Wachstumsebene als die des darunterliegenden GaN-Unterbaus detektiert.

Aus den unterschiedlichen Einzellinienmessungen und reziproken Gitterkarten verschiedener Reflexe sind die Gitterkonstanten der GaN-Puffer und der AlInN-Schichten hinreichend genau bekannt, sodass die einzelnen Gitterkonstanten und Unterschiede in diesen miteinander verglichen werden können. In Abb. 5.11 sind die Differenzen der Gitterkonstanten des GaN-Puffers und der darauf abgeschiedenen AlInN-Schicht in $[1\bar{1}00]$ und $[11\bar{2}\bar{3}]$ gegeneinander dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass die Datenpunkte der in $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben (schwarze Datenpunkte, Abb. 5.11) alle sehr gut auf der vertikalen Linie liegen. Dies bedeutet, dass die AlInN-Schichten und die zugehörigen GaN-Puffer die gleichen Gitterparameter in $[1\bar{1}00]$ -Richtung besitzen. Der Unterschied der Gitterparameter in $[11\bar{2}\bar{3}]$ -Richtung ist für alle drei Proben negativ, womit die AlInN-Schichten zu kleineren Gitterkonstanten relaxiert sind und eine tensile Verspannung in diese Richtung abgebaut haben. Während die 46 nm und 140 nm dicken Proben zunächst den Eindruck vermitteln mit steigender Schichtdicke auch eine ansteigende Differenz in den Gitterkonstanten aufzuweisen, bestätigt sich dieser Trend mit der 290 nm dicken Probe leider nicht. Qualitativ verhalten sich die $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben jedoch wie erwartet und zeigen alle eine Relaxation der AlInN-Schichten ausschließlich in die tensil verspannte $[11\bar{2}\bar{3}]$ -Richtung.

Für die $[11\bar{2}\bar{3}]$ angepassten Proben zeigt sich das erwartete Verhalten hingegen nicht so deutlich. Naiv betrachtet ist eine Relaxation dieser Proben in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung zu erwarten, wohingegen die Gitterparameter in die angepasste Richtung gleich der des GaN sein sollten. Unter Berücksichtigung aller Messungen zeigt sich jedoch, dass alle drei Proben eine Relaxation der AlInN-Schichten in $[11\bar{2}\bar{3}]$ hin zu größeren Atomabständen zeigen. Zusätzlich weisen die AlInN-Schichten in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung quasi die gleichen Gitterkonstanten wie die darunterliegenden GaN-Schichten auf. Wie bereits zuvor diskutiert wurde, kann davon ausgegangen werden, dass der Relaxationsmechanismus des Gleitens von bestehenden Versetzungen aus dem Unterbau in der Basal-Fläche hin zur Grenzschicht eine derart geringere Aktivierungsenergie als andere Relaxationsmechanismen benötigt, sodass dieser bevorzugt abläuft. Die kompressive Verspannungsenergie der Schicht wird somit nicht primär mit einer Relaxation in $[1\bar{1}00]$ abgebaut, sondern führt zu einer Relaxation in $[11\bar{2}\bar{3}]$.

Es wurden jedoch sowohl in den reziproken Gitterkarten am $(20\bar{2}2)$ -Reflex als auch in den *in-plane*-Messungen am $(1\bar{1}00)$ -Reflex Hinweise auf eine Relaxation der Schichten in $[1\bar{1}00]$ gefunden. Unter Berücksichtigung der asymmetrisch verbreiterten Peakanteile in den Gitterkarten zeigen sich zwei Effekte. Erstens steigt der Unterschied in den Gitterkonstanten der AlInN-Schichten und der GaN-Puffer signifikant an und deutet somit auf eine starke Relaxation dieser Anteile hin. Und zweitens ergeben sich für die relaxierten Bestandteile der AlInN-Schichten höhere Indiumgehalte als die der verspannt aufgewachsenen

Anteile. So ergibt sich für die 140 nm dicke AlInN-Schicht ein Indiumgehalt des relaxierten Anteils von 28,5%, welcher damit 0,7% über dem durchschnittlichen Indiumgehalt der Schicht liegt. Für die 280 nm dicke Probe liegt der Indiumgehalt des relaxierten Anteils 1,1% über dem durchschnittlichen Indiumgehalt und beträgt 26,8%. Die 400 nm Schicht zeigt sogar einen um 1,6% gesteigerten Indiumgehalt für die relaxierten Anteile.

Bei dem hier beobachteten Effekt könnte es sich um den sogenannten „*composition pulling effect*“ handeln. Dieser Effekt wurde bereits Mitte bis Ende der Neunziger Jahre des letzten Jahrhunderts für das Materialsystem GaInN [158, 159] und zu Beginn des neuen Jahrhunderts auch für das Materialsystem AlGaIn beobachtet [160, 161]. Der *composition pulling effect* wird bei der Relaxation verspannter Epitaxieschichten beobachtet und einer damit einhergehenden Verringerung der gespeicherten Verspannungsenergie innerhalb der Schichten zugeschrieben. Es wird davon ausgegangen, dass die kompressive Verspannung von GaInN auf GaN beispielsweise den weiteren Einbau von Indium in die Schicht behindert. Relaxiert die Schicht nun während des Wachstums und baut Verspannungsenergie ab, so wird anschließend unter gleichen Bedingungen mehr Indium eingebaut als dies zuvor der Fall gewesen ist.

[11 $\bar{2}3$]-angepasste AlInN-Schichten unterliegen qualitativ einer ganz ähnlichen Verspannung wie GaInN auf GaN. Da das AlInN nominell in [11 $\bar{2}3$] gitterangepasst ist und daher einer kompressiven Verspannung in [1 $\bar{1}00$] unterliegt, würde ein größerer molarer Anteil des Indium im AlInN bei gleichbleibendem Verspannungszustand auch eine größere Verspannungsenergie bedeuten. Da bei der Relaxation des AlInN aber Verspannung und damit auch Verspannungsenergie abgebaut wird, kann unter gleichen Bedingungen ein größerer molarer Anteil an Indium inkorporiert werden ohne, die Verspannungsenergie zusätzlich zu steigern.

Zusätzlich zu den bereits durchgeführten Untersuchungen können noch die Relaxationsgrade der einzelnen Proben und Schichtanteile bestimmt werden. Diese bestimmen sich aus den gemessenen und freistehenden Gitterkonstanten und Atomabständen in die jeweilige Richtung. Für den Relaxationsgrad einer Schicht gilt:

$$R = \frac{a_{L,exp} - a_{S,exp}}{a_L - a_{S,exp}} \quad (5.1)$$

Hierbei sind $a_{L,exp}$ und a_L die gemessene bzw. freistehende Gitterkonstante der Schicht in die entsprechende Richtung der Wachstumsebene, und $a_{S,exp}$ die gemessene Gitterkonstante des Substrates in die gleiche Richtung. Entspricht die Differenz der gemessenen Gitterkonstanten gerade der Differenz der freistehenden Gitterkonstanten, so ist die Schicht vollständig, also zu 100% relaxiert. Ist die gemessene Differenz der Gitterkonstanten gleich null, so adaptiert die Schicht die Gitterkonstante des Substrats und ist damit vollverspannt.

Tabelle 5.1: Relaxationsgrade der in $[1\bar{1}00]$ (A-C) und $[11\bar{2}3]$ (D-F) angepassten Proben. Für die in $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben sind die Relaxationsgrade einmal unter Berücksichtigung des AlInN-Hauptpeaks und einmal unter Berücksichtigung der relaxierten Anteile des AlInN aufgeführt. [157]

Probe	Relaxation $[1\bar{1}00]$ (%)	Fehler $[1\bar{1}00]$ (%)	Relaxation $[11\bar{2}3]$ (%)	Fehler $[11\bar{2}3]$ (%)
A	-1,0	25,6	52,6	7,7
B	318,2	2096,8	63,0	10,0
C	10,2	19,5	50,8	13,5
D	5,0	4,0	126,2	17,0
D (relax.)	41,1	2,7	107,6	11,8
E	5,1	6,5	345,0	45,9
E (relax.)	29,5	16,6	75,4	3,0
F	5,9	3,5	100,5	27,,8
F (relax.)	85,1	25,0	59,0	12,1

Bei Betrachtung der Gleichung fällt ein Problem auf. Liegt eine Gitteranpassung vor, so wird der Nenner gleich null. Aus diesem Grund ist es nicht möglich sinnvolle Werte für den Relaxationsgrad von gitterangepassten und nahezu gitterangepassten Schichten in Richtung der Gitteranpassung anzugeben. Daher sind in der folgenden Tabelle 5.1 die jeweils verlässlichen Werte für die Relaxation fettgedruckt.

Für die $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben A bis C zeigt sich auch nach Bestimmung der Relaxationsgrade ein ganz ähnliches Verhalten, wie es aus der reinen Differenz der Atomabstände aus Abbildung 5.11 bereits zu erwarten gewesen ist. Die Relaxationsgrade der drei Schichten in $[11\bar{2}3]$ liegen alle im Bereich von 50% bis knapp über 60%. Es ist keine deutliche Abhängigkeit des Relaxationsgrades einer Schicht von ihrer Schichtdicke zu erkennen. Für Probe B wird auch noch einmal das Problem bei der Bestimmung des Relaxationsgrades in die Richtung der Gitteranpassung deutlich sichtbar. Da diese Probe mit einem Indiumgehalt von 18,1% nahezu perfekt an die Gitterkonstante des GaN in $[1\bar{1}00]$ angepasst ist und somit die freistehenden Gitterkonstanten der beiden Materialien identisch sind, resultieren für sehr kleine Abweichungen der gemessenen Gitterkonstanten und deren Fehler enorme Werte für den Grad der Relaxation und dessen Fehler.

Im Fall der $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben muss hinsichtlich der Relaxation wieder zwischen

den unterschiedlichen Anteilen der AlInN-Schichten unterschieden werden. Werden lediglich die Hauptpeaklagen des AlInN in den einzelnen Messungen und reziproken Gitterkarten berücksichtigt, so ergibt sich für keine der drei Proben eine signifikante Relaxation in $[1\bar{1}00]$. Alle drei Proben weisen einen Relaxationsgrad zwischen 5% und etwa 6% auf. Die Fehler dieser Relaxationsgrade liegen mit Werten von 3,5% bis 6,5% in einem ähnlichen Bereich und zeigen, dass es sich hierbei höchstens um eine marginale Relaxation der Schichten in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung handeln kann.

Anders sieht es aus, wenn die Asymmetrien der Peaks berücksichtigt werden. Alle drei $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben zeigen dann signifikant höhere Relaxationsgrade in die $[1\bar{1}00]$ -Richtung. Für den relaxierten Anteil der Schicht aus Probe D mit einer Gesamtschichtdicke von 140 nm kann der Grad der Relaxation zu rund 40% bestimmt werden. Auch für Probe E erhöht sich der Grad der Relaxation des relaxierten Teils der Schicht auf rund 30%, wohingegen der Hauptbestandteil lediglich eine Relaxation von 5% zeigte. Der signifikanteste Unterschied im Relaxationsgrad der beiden Anteile der AlInN-Schichten zeigt sich für die mit 400 nm dickste Schicht. Hier zeigt der relaxierte Anteil der Schicht ein Relaxationsgrad von rund 85%. Auch in diesem Fall ist der Trend des Relaxationsgrades mit der Schichtdicke nicht sehr deutlich ausgeprägt. Dennoch kann auf der Basis dieser Daten von einer steigenden Relaxation mit fortschreitender Ortskoordinate in Wachstumsrichtung ausgegangen werden.

Da die AlInN-Schichten zusammen mit einer Relaxation in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung in eben diese Richtung verkippen, kann davon ausgegangen werden, dass es sich hierbei um den von Romanov *et al.* postulierten Mechanismus über ein Gleiten von Versetzungen in der Basalfläche hin zur Grenzfläche [48] handelt. Über die Mechanismen, welche zur Relaxation in $[1\bar{1}00]$ führen, kann auf Basis dieser Experimente keine sichere Aussage getroffen werden. Da sowohl GaInN als auch AlGaIn mit zunehmendem molaren Anteil des Indiums bzw. des Aluminiums in alle Richtungen der Wachstumsebene kompressiv bzw. tensil verspannt sind, relaxieren diese primär über den von Romanov *et al.* postulierten Mechanismus. AlInN hingegen ist eindimensional gitterangepasst und lediglich in eine Richtung der Wachstumsebene kompressiv bzw. tensil verspannt. Daher kann nicht davon ausgegangen werden, dass sich AlInN in beiden Fällen ähnlich dem GaInN oder AlGaIn verhält. Ein Gleiten von bestehenden Versetzungen auf den prismatischen Seitenflächen, wie es z. B. Yoshida *et al.* im Fall von m-planarem GaInN auf GaN beobachtet wird [162], kann in diesem Fall ausgeschlossen werden. Die mit der Relaxation einhergehende Verkipfung der Schicht in $[1\bar{1}00]$ wird in unseren Experimenten nicht beobachtet. Vermutlich führt die Bildung von Gitterfehlانpassungsversetzungen im Fall von $[11\bar{2}3]$ angepassten AlInN zur Relaxation in $[1\bar{1}00]$. Für eine hinreichende Untersuchung der genauen Relaxationsmechanismen dieser Schichten sind tiefgehende Untersuchungen mittels Transmissionselektronenmikroskopie vonnöten. Leider war es bisher nicht möglich, solche Untersuchungen durchzuführen.

Diese Ergebnisse zeigen, dass es durch gezielte eindimensionale Gitteranpassung von AlInN in die einzelnen Richtungen der Wachstumsebene von semi-polaren ($11\bar{2}2$)-orientierten GaN-Schichten möglich ist die Schichten kontrolliert in die nicht gitterangepasste Richtung relaxieren zu lassen. Dass alle drei nominell in $[1\bar{1}00]$ angepassten Proben einen ähnlichen Relaxationsgrad in $[11\bar{2}3]$ aufweisen, spricht dafür, dass die Relaxation in diesem Fall bereits bei Schichtdicken von unter 50 nm vonstatten geht. Die fehlende Abhängigkeit des Relaxationsgrades von der Schichtdicke suggeriert, dass bei der weiteren Abscheidung von Material zwischen 50 nm und 290 nm keine weitere Relaxation auftritt. Durch die Abscheidung dünnerer Schichten wird es dennoch möglich sein geringere Relaxationsgrade zu realisieren und damit die Abstände der Atome an der Oberfläche in die $[11\bar{2}3]$ -Richtung nahezu beliebig einstellen zu können. Für die $[11\bar{2}3]$ angepassten Proben ist es sehr gut möglich über die abgeschiedene Schichtdicke den Grad der Relaxation der Schicht an der Oberfläche einzustellen.

Auf dieser Basis kann gezielt darauf Einfluss genommen werden, welche Gitterkonstanten für eine spätere Abscheidung optisch aktiver Materialien wie z. B. GaInN-Quantenfilmstrukturen in der Wachstumsebene angeboten werden. Die Realisierung metamorpher Pufferschichten in semi-polaren ($11\bar{2}2$)-orientierten optisch aktiven Bauelementen wie LEDs sind damit in greifbare Nähe gerückt.

5.2 Wachstum von m-planarem AlInN

Nachdem im letzten Abschnitt die semi-polaren ($11\bar{2}2$)-orientierten AlInN-Schichten ausführlich diskutiert wurden, sollen in diesem Abschnitt das Wachstum und die Charakterisierung eindimensional gitterangepasster AlInN-Schichten auf nichtpolarem m-orientierten GaN vorgestellt und diskutiert werden. Wie im Abschnitt 2.1.2 in Abb. 2.2 bereits gezeigt wurde, handelt es sich bei den m-orientierten Kristallfacetten um die Mantelflächen der hexagonalen Einheitszelle. Als Konsequenz daraus werden die m-Flächen aus den äquivalenten Richtungen des Typs $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ und $[0001]$ aufgespannt. Es sind somit sowohl die a - als auch die c -Gitterkonstante direkt an der Bildung der Fläche beteiligt. Wie bereits erläutert, liegt die Gitteranpassung der a - und c -Gitterkonstanten des AlInN an die des GaN nicht bei der gleichen Zusammensetzung vor. Eine Gitteranpassung an die a - bzw. c -Gitterkonstante des GaN wird bei rund 18 % bzw. 28 % erreicht. Aus diesem Grund sollte es möglich sein, die AlInN-Schichten eindimensional an die Gitterkonstante des GaN anzupassen und so eine gezielte Relaxation der jeweils anderen nicht gitterangepassten Richtung zu erreichen.

Durch die gezielte Relaxation des AlInN in unterschiedliche Richtungen in der Wachstumsebene wird es möglich, die anisotrope Verspannung von darauffolgenden Schichten wie z. B. Quantenfilmstrukturen auf Basis von GaInN gezielt zu beeinflussen. Die aus der

anisotropen Verspannung der Quantentöpfe resultierenden Effekte, wie z. B. der hohe Polarisationsgrad des emittierten Lichts, könnten auf diese Art und Weise gezielt beeinflusst und gesteuert werden. Des Weiteren können durch die Realisierung relaxierter Pufferschichten auf Basis von AlInN größere Gitterkonstanten innerhalb der Wachstumsebene für das darauffolgende Wachstum angeboten werden. Die starke kompressive Verspannung von GaInN-Quantenfilmstrukturen auf GaN kann so verringert werden. Bei gleichbleibender Schichtdicke der Quantentöpfe können so höhere Indiumgehalte in den GaInN-Schichten realisiert werden, ohne die kritische Schichtdicke zu überschreiten. Dies führt wiederum zu einer Vergrößerung der Wellenlänge des emittierten Lichts und wäre damit ein weiterer Schritt in Richtung langwelliger Lichtemitter auf Basis von GaInN-Quantentöpfen.

Auch im Falle der Epitaxie von nichtpolaren *m*-orientierten Strukturen hängen viele Eigenschaften der abgeschiedenen Schichten von der Wahl des Substrats bzw. Unterbaus ab. Zur Realisierung *m*-orientierter AlInN-Schichten stehen am Institut für Angewandte Physik zwei unterschiedliche Methoden zur Verfügung. Entweder werden *m*-orientierte GaN-Pufferschichten mittels einer AlN-Nukleationsschicht auf *m*-orientierten 6H-Siliziumcarbid (6H-SiC) Substraten abgeschieden oder das Wachstum findet auf kommerziell hergestellten freistehenden *m*-orientierten GaN-Pseudosubstraten statt. Beide Techniken haben einige Vor- aber auch Nachteile.

Da SiC-Kristalle kostengünstig mit großen Durchmessern hergestellt werden können, können auch Substrate mit unterschiedlichen Orientierungen zu bezahlbaren Preisen aus diesen durch Schneiden in die jeweilige Richtung realisiert werden. Ein großer Vorteil der Heteroepitaxie von Gruppe-III-Nitriden auf SiC ist somit die Verfügbarkeit von Substraten mit großen Durchmessern. Ganz im Gegensatz dazu stehen die *m*-orientierten GaN-Pseudosubstrate. Diese werden senkrecht aus dicken mittels HVPE hergestellten und *c*-orientierten GaN-Schichten geschnitten. Da die Abscheidung mehrerer Millimeter dicker GaN-Schichten mittels HVPE und das anschließende Schneiden des abgelösten GaN sehr zeitintensiv und aufwendig sind, sind auch die freistehenden GaN-Pseudosubstrate trotz der sehr kleinen Abmessungen von nur wenigen Millimetern Kantenlänge sehr teuer.

Ebenfalls unterscheiden sich die beiden Techniken, wenn es um die Dichte der möglichen Kristalldefekte innerhalb des GaN geht. So liegt die Dichte der Durchstoßversetzungen in den freistehenden GaN-Pseudosubstraten mit einem Wert von ungefähr $5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$ rund zweieinhalb Größenordnungen unter der Dichte von Durchstoßversetzungen in den GaN-Pufferschichten auf *m*-orientiertem 6H-SiC. Diese liegen im Bereich von $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Sowohl die Gruppe-III-Nitride AlN, InN und GaN als auch 6H-SiC gehören der gleichen Raumgruppe an. Dabei handelt es sich um die Raumgruppe $P6_3mc$. Der wesentliche Unterschied der Gruppe-III-Nitride und dem 6H-SiC liegt in der Stapelfolge. Während alle genannten Gruppe-III-Nitride der 2H-Stapelfolge der Wurtzitstruktur folgen, also eine

Tabelle 5.2: Standardwachstumsbedingungen der AlInN-Schichten auf GaN-Pufferschichten auf m-orientiertem 6H-SiC und m-GaN Pseudosubstraten.

	Druck (hPa)	Q_{TMIIn} ($\mu\text{Mol}/\text{min}$)	Q_{TMAI} ($\mu\text{Mol}/\text{min}$)	Q_{NH₃} (mMol/min)	V/III
m-SiC	20	21,7	12,2	115,1	3395
m-GaN	20	21,7	12,2	89,2	2630

ABAB-Stapelfolge aufweisen, folgt das SiC der 6H-Stapelfolge *ABCACB*. Beim Vergleich der Gitterkonstanten des 6H-SiC von $a_0 = 3,086 \text{ \AA}$ und $c_0 = 15,15 \text{ \AA}$ [163] mit den Gitterkonstanten von GaN (siehe Tab. 2.1) berechnen sich die Gitterfehlانpassungen in die *a*- bzw. *c*-Richtung unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Stapelfolgen zu $-3,3 \%$ bzw. $-2,7 \%$. Aufgrund der unterschiedlichen Stapelfolgen von GaN und 6H-SiC wird in den GaN-Schichten eine sehr hohe Anzahl von Stapelfehlern eingebaut. Typische Werte für die Stapelfehlerdichte in GaN-Pufferschichten auf 6H-SiC-Substraten liegen im Bereich von $\geq 1 \times 10^6 \text{ cm}^{-1}$ [164, 165].

Im Folgenden werden nun die Unterschiede und Gemeinsamkeiten von eindimensional gitterangepassten AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken auf beiden Typen von Substraten vorgestellt. Ziel des folgenden Kapitels dieser Arbeit ist die Realisierung der kontrollierten Relaxation von m-orientierten eindimensional gitterangepassten AlInN-Schichten in die unterschiedlichen Richtungen der Wachstumsebene.

5.2.1 Die Abscheidung von m-planarem AlInN

Da sich an der Oberfläche der SiC-Substrate eine sehr stabile Oxidationsschicht aus SiO_2 bildet, werden die SiC-Substrate im ersten Schritt mittels eines nass-chemischen Ätzverfahrens mit Hilfe von 40%iger Flußsäure von dieser Oxidschicht befreit. Anschließend werden die Substrate im Reaktor für 3 min bei einer Temperatur von 1190°C unter Wasserstoffatmosphäre ausgeheizt. Dieser Schritt dient der weiteren Reinigung der Substrate von möglichen Adsorbaten und einer Ausheilung von vorhandener Kristalldefekte an der Oberfläche und kommt so der Oberflächenmorphologie zugute [166]. Das eigentliche Wachstum beginnt mit der rund 30 minütigen Abscheidung einer AlN-Nukleationsschicht. Im eigentlichen Sinne handelt es sich hierbei nicht um eine echte Nukleation, da das AlN ebenfalls bei einer Temperatur von 1190°C abgeschieden wird. Bei solch hohen Temperaturen bildet das AlN keine Nukleationskeime aus. Es handelt sich bei der AlN-Schicht mehr um eine Pufferschicht. Diese wird eingeführt, da die Gitterfehlانpassung zwischen AlN und 6H-SiC

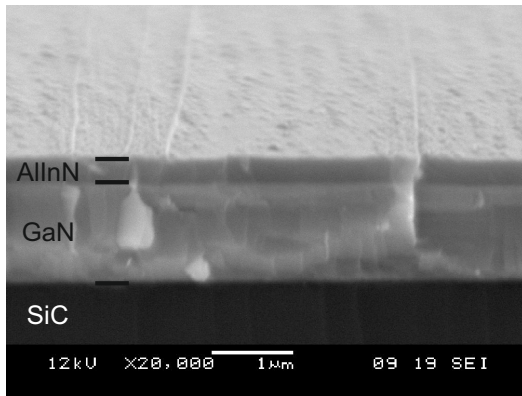


Abbildung 5.12: REM-Aufnahme einer AlInN-Schicht mit einer Wachstumszeit von 140 min abgeschieden unter Standardbedingungen und einer Temperatur von 855 °C [167]. Die Schichtdicke beträgt 285 nm bis 300 nm.

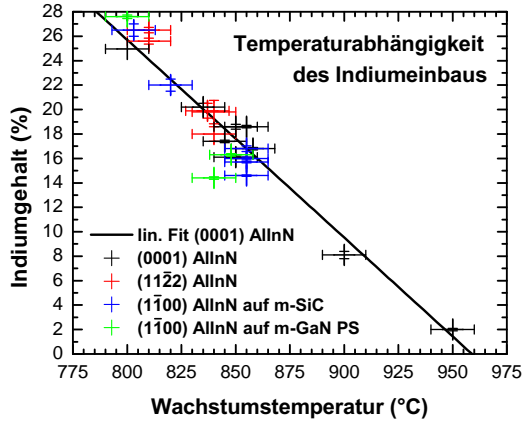
etwas geringer ausfällt als für GaN und 6H-SiC und daher die Gitterfehlpassungen an den Übergängen der einzelnen Schichten minimiert werden können. Da im Folgenden im Zusammenhang mit der darauf abgeschiedenen GaN-Schicht von der Pufferschicht gesprochen wird, soll die AlN-Schicht weiter als Nukleationsschicht bezeichnet werden. Die eigentliche GaN-Pufferschicht wird dann bei einem Reaktordruck von 20 hPa und einer Temperatur von 1180 °C für 40 min abgeschieden. Die Dicke der GaN-Pufferschicht beträgt letztendlich ca. 1 µm.

Bei der Abscheidung von AlInN-Schichten auf den GaN-Pseudosubstraten muss kein solcher hoher Aufwand zur Reinigung und Präparation der Substrate betrieben werden. Die GaN-Pseudosubstrate werden bei Raumtemperatur für fünf Minuten in verdünnter KOH-Lösung von möglichen Staubpartikeln und Verunreinigungen der Oberfläche befreit. Anschließend werden die Substrate in den Wachstumsreaktor eingebaut und es wird für vier Minuten bei einer Temperatur von 1180 °C nochmals eine frische GaN-Belegung abgeschieden.

Die Standard-Wachstumsbedingungen für die AlInN-Schichten auf *m*-SiC Substraten und GaN-Pseudosubstraten können der Tabelle 5.2 entnommen werden. Die unterschiedlichen V/III-Verhältnisse sind historisch begründet. Frühere hausinterne Optimierungen der Wachstumsbedingungen von GaN und GaInN auf *m*-SiC-Substraten führte zu einer Erhöhung des V/III-Verhältnisses durch eine Anhebung des Ammoniak-Flusses. Die Zusammensetzung wird auch im Falle der *m*-orientierten AlInN-Schichten ausschließlich über die Prozesstemperatur geregelt, die Schichtdicke über die Wachstumszeit.

Da sich aufgrund von Oberflächenrauheiten der AlInN-Schichten auf den 6H-SiC-Substraten keine Schichtdickenoszillationen in den symmetrischen Röntgenmessungen ausbilden, wurde die Wachstumsrate für diese Schichten mittels REM-Messungen bestimmt. In Abb. 5.12 ist eine REM-Aufnahme einer AlInN-Schicht mit einer Wachstumszeit von 140 min gezeigt.

Abbildung 5.13: Die Einbaueffizienz von Indium in AlInN unterscheidet sich auf keiner der drei untersuchten Orientierungen. Sowohl auf den polaren (0001)-orientierten (schwarze Datenpunkte), den semi-polaren (11 $\bar{2}2$)-orientierten (rote Datenpunkte) und den nichtpolaren (1 $\bar{1}00$) orientierten GaN-Unterbauten (blaue und grüne Datenpunkte) zeigen sich identische Einbaueffizienzen für das AlInN.



Unter Berücksichtigung des Winkels dieser Aufnahme von 5° zwischen Aufnahme- und Oberfläche lässt sich die Schichtdicke dieser Probe zu rund 285 nm bis 300 nm bestimmen. Die sich daraus ergebende Wachstumsrate von $2,04 \text{ nm min}^{-1}$ bis $2,14 \text{ nm min}^{-1}$ entspricht somit sehr gut der Wachstumsrate der polaren (0001) orientierten und semi-polaren (11 $\bar{2}2$)-orientierten AlInN-Schichten, welche nahezu exakt $2,0 \text{ nm min}^{-1}$ betragen. Der Unterschied der Wachstumsraten beträgt im schlimmsten Fall 7 % und liegt damit im Rahmen eines möglichen Fehlers bei der Bestimmung der Schichtdicke mit Hilfe von bildverarbeitenden Programmen.

5.2.2 Der Indiumeinbau für m-orientiertes AlInN

Zuvor wurde bereits erwähnt, dass auch im Fall der (1 $\bar{1}00$)-orientierten AlInN-Schichten die Zusammensetzung ausschließlich über die Wachstumstemperatur geregelt wird. Um die Temperaturabhängigkeit des Indiumeinbaus nichtpolarer (1 $\bar{1}00$)-orientierter AlInN-Schichten zu untersuchen, wurden zwei Probenreihen auf 6H-SiC-Substraten und GaN-Pseudosubstraten in einem Temperaturbereich von 800°C bis 850°C abgeschieden. Dies entspricht bei den polaren (0001)-orientierten Schichten Indiumgehalten von 28 % bis 18 %.

In Abb. 5.13 sind die resultierenden Indiumgehalte der (1 $\bar{1}00$)-orientierten AlInN-Schichten in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur zusammen mit den Datenpunkten der polaren und semi-polaren AlInN-Schichten dargestellt. Sowohl die nichtpolaren AlInN-Schichten auf 6H-SiC-Substraten (blaue Datenpunkte) als auch die nichtpolaren AlInN-Schichten auf GaN-Pseudosubstraten (grüne Datenpunkte) zeigen keine signifikant unterschiedlichen Einbaueffizienzen. Im Rahmen der Temperaturungenauigkeiten liegen ausgenommen ei-

ner einzigen Probe alle nichtpolaren Proben auf der linearen Anpassung (schwarze Linie, Abb. 5.13) der polaren AlInN-Schichten. Die etwas größere Variation aller Datenpunkte gegenüber der polaren AlInN-Schichten liegt vermutlich in den unterschiedlichen Wärmeleitfähigkeiten der unterschiedlichen Substrate begründet. Mit der Wärmeleitfähigkeit des Substrats ändert sich auch die Oberflächentemperatur der Probe, welches wiederum den Einbau von Indium stark beeinflusst. Da es sich bei den gemessenen Temperaturen um die unkorrigierten und mittels Thermoelement gemessenen Prozesstemperaturen innerhalb des Suszeptors handelt, kann dieser Fehler nicht verhindert werden.

Interessant hierbei ist, dass die Proben in diesem Temperaturbereich ein sehr lineares Einbauverhalten von Indium in Abhängigkeit von der Temperatur zeigen. Dies ist nicht unbedingt zu erwarten gewesen, da sich die Gitterfehlانpassung der Proben in die unterschiedlichen Richtungen der Wachstumsebene, hier die *a*- und die *c*-Richtung, mit dem Indiumgehalt der Probe ändert. Die bei einer Temperatur von rund 850 °C abgeschiedenen Proben mit einer nominellen Gitteranpassung an die *a*-Gitterkonstante des GaN weisen eine tensile Verspannung der *c*-Gitterkonstante auf. Die Schichten, die bei einer Temperatur von rund 800 °C abgeschieden wurden, sind nominell an die *c*-Gitterkonstante des GaN angepasst und unterliegen somit einer kompressiven Verspannung der *a*-Gitterkonstante. Bei Temperaturen zwischen diesen beiden Werten zeigt sich für die Schichten eine tensile Verspannung der *c*-Gitterkonstante und eine kompressive Verspannung der *a*-Gitterkonstante. Es wäre nun denkbar gewesen, dass die Schichten einen gesteigerten Indiumeinbau zeigen, solange eine der beiden Gitterkonstanten tensil verspannt ist, da die Verspannungsenergie einen weiteren Einbau von Indium begünstigen würde. Mit steigendem Indiumgehalt und damit abnehmender tensiler Verspannung würde mit einem fortschreitenden Indiumeinbau die kompressive Verspannung weiter zunehmen und eine Abnahme der Einbaueffizienz des Indiums erwarten lassen. Auf Basis dieser Daten kann davon ausgegangen werden, dass auch die nichtpolaren ($1\bar{1}00$) orientierten AlInN-Schichten die gleiche Temperaturabhängigkeit der Indiumeinbaueffizienz zeigen wie die polaren und semi-polaren Schichten.

5.2.3 Die Autoinkorporation von Gallium in AlInN

Seit dem Jahr 2012 mehren sich in der Literatur Berichte über einen parasitären Einbau von Gallium in AlInN-Schichten ohne die Anwesenheit jeglicher Ausgangssubstanzen für Gallium. Zhu *et al.* fanden hierbei Galliumgehalte von bis zu 45 % der Gruppe-III-Spezies in AlIn(Ga)N-Schichten, welche unter sehr indiumhaltigen Wachstumsbedingungen abgeschieden wurden. Bei der detaillierten Untersuchung des Ursprungs dieses parasitären Galliums fanden Zhu *et al.* heraus, dass dieses hauptsächlich aus den darunterliegenden GaN-Schichten der Unterbauten und Substrate stammt. Lediglich rund 2 % des Galliums sollen

von den Seitenwänden und anderen Teilen des Reaktors stammen. Hohe Wachstumstemperaturen und die Anwesenheit von Wasserstoff im Trägergas begünstigen weiterhin den ungewollten Einbau von Gallium über eine Zersetzung der GaN-Schichten und eine anschließende Interdiffusion der Galliumatome in die AlInN-Schicht [168]. Hiroki *et al.* hingegen publizierten im Jahr 2013, dass die Quelle für parasitäres Gallium in AlIn(Ga)N-Schichten die Wände und andere Teile des Reaktors seien [75]. Dies deckt sich mit den Beobachtungen einiger weiterer Arbeitsgruppen. So fanden Choi *et al.* und Kim *et al.* heraus, dass der parasitäre Einbau von Gallium in die Schichten über die Bildung eines flüssigen In-Ga-Eutektikums aus Galliumatomen von den Reaktorwänden und -teilen und adsorbierten Indiumatomen stattfinden soll [76, 77]. Ebenso soll bei der Dotierung der Schichten mit Magnesium bzw. die Anwesenheit der Magnesiumquelle Bis(cyclopentadienyl)magnesium (Cp_2Mg) den Einbau von Gallium fördern, wohingegen das GaN-Substrat bzw. die darunterliegende GaN-Schicht keinen Beitrag zum Galliumeinbau liefern sollen [77]. Der parasitäre Galliumgehalt besteht im Fall der Untersuchungen von Choi *et al.* und Kim *et al.* über die gesamte Schichtdicke von 100 nm und mehr [77]. Zu dem Ergebnis, dass die Hauptquelle des parasitären Galliums die Reaktorwände und sonstigen Teile sind, kommen auch Smith *et al.* und Taylor *et al.* [78, 79]. Hier wird schnell ersichtlich, dass die Ergebnisse der unterschiedlichen Arbeitsgruppen zur Herkunft des parasitären Galliums sehr unterschiedlich und teilweise sogar gegensätzlich sind.

Um zu untersuchen, ob sich im Fall der in Braunschweig hergestellten Proben ebenfalls ein derart hoher parasitärer Galliumeinbau nachweisen lässt, wurde eine Probe mit zwei unterschiedlich gitterangepassten AlInN-Schichten auf einem m-planaren 6H-SiC-Substrat hergestellt. Die Dicke der beiden AlInN-Schichten beträgt jeweils nominell 100 nm. Die erste der beiden Schichten hat eine nominelle Gitteranpassung an die a -Gitterkonstante der m-planaren GaN-Pufferschicht und somit einen nominellen Indiumgehalt von rund 18 %. Die zweite Schicht ist nominell in c -Richtung gitterangepasst und sollte somit einen Indiumgehalt von rund 28 % aufweisen. Diese Probe wurde anschließend von Herrn Daniel Henzler in der Arbeitsgruppe von Herrn Prof. Dr. Josef Zweck an der Universität Regensburg mittels engergiedispersiver Röntgenspektroskopie untersucht. Hierbei werden die Atome mittels eines hochenergetischen Elektronenstrahls angeregt. Die anschließende Auswertung der emittierten charakteristischen Röntgenstrahlung gibt Auskunft über die Zusammensetzung des untersuchten Materials.

In Abb.5.14 sind die gemessenen Verläufe der Aluminium-, Gallium- und Indiumgehalte über einen Bereich der letzten rund 50 nm der GaN-Pufferschicht bis rund 50 nm in die zweite AlInN-Schicht hinein gezeigt. In der GaN-Pufferschicht zeigt sich ein Galliumgehalt von 100 %, wohingegen sich Aluminium und Indium dort nicht nachweisen lassen. Bei einer Ortskoordinate von 50 nm endet die GaN-Pufferschicht und die erste AlInN-Schicht mit dem geringeren Indiumgehalt der beiden Schichten beginnt. Die Aluminium- (grüne

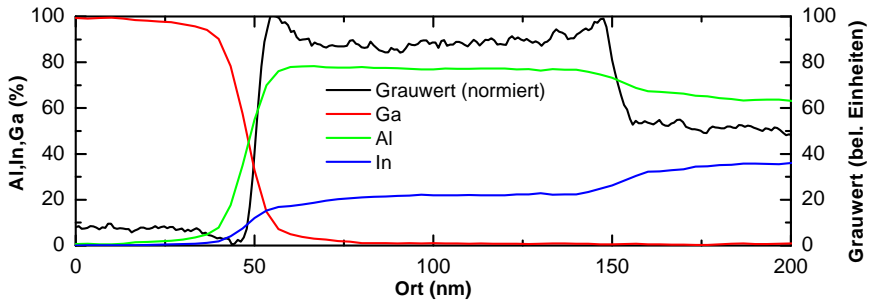


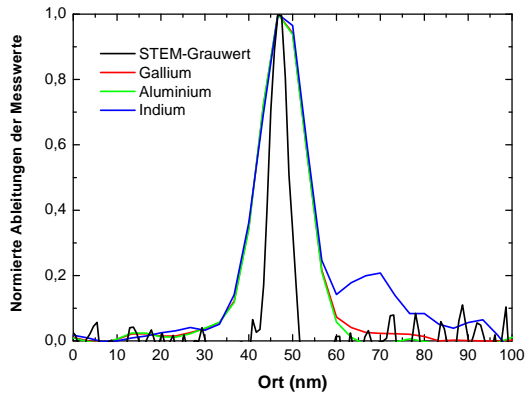
Abbildung 5.14: Darstellung der EDX Profile der Al-, Ga- und In-Spezies einer aus zwei senkrecht zueinander gitterangepassten AlInN-Schichten bestehenden Probe auf einer GaN-Pufferschicht auf *m*-planarem 6H-SiC. In schwarz ist der Verlauf des Grauwerts aus einer zugehörigen TEM-Messung gezeigt [169].

Linie) und Indiumgehalte (blaue Linie) steigen an der Grenzfläche stark an, während der Galliumgehalt zeitgleich sinkt. Innerhalb der ersten Schicht werden die Aluminium- und Indiumgehalte mittels EDX zu 82,9 % bzw. 17,1 % bestimmt. Die zweite Schicht weist eine Zusammensetzung von 70,2 % Aluminium und 29,8 % Indium auf. Gallium kann weder in der ersten noch in der zweiten Schicht nachgewiesen werden.

Die Ergebnisse zu den Indiumgehalten der beiden Einzelschichten decken sich nahezu perfekt mit den mittels hochauflösender Röntgenbeugung bestimmten Zusammensetzungen der beiden Schichten dieser Probe aus Braunschweig. Hier wurden für die erste und zweite Schicht Indiumgehalte von 16,9 % bzw. 30,4 % ermittelt [170]. Dies zeigt die hohe Genauigkeit der in Braunschweig angewendeten Methode zur Bestimmung der Zusammensetzung von *m*-planaren Schichten mittels hochauflösender Röntgenbeugung.

Dass die Übergänge sowohl für den STEM-Grauwert als auch für die unterschiedlichen Aluminium-, Gallium- und Indiumgehalte keine Stufenfunktionen sind wie sie für eine scharfe Grenzfläche zu erwarten wären, liegt in einigen apparativen Gegebenheiten begründet. Zum einen wird der Elektronenstrahl astigmatisch in eine Richtung aufgeweitet und hat eine Ausdehnung von rund $5 \times 100 \text{ nm}^2$, zum anderen wird die laterale Auflösung durch die Eindringtiefe in das Material beeinflusst. Treffen die hochenergetischen Elektronen auf das zu untersuchende Material, werden diese gestreut. Hierdurch entsteht ein birnenförmiges Volumen, welches durch die Elektronen angeregt wird. Durch Schneiden einer dünnen Lamelle der Probe und Wahl höherer Elektronenenergien kann dieses Volumen zwar verringert, jedoch nicht gänzlich vermieden werden. Wird die Probe anschließend mit dem ohnehin rund 5 nm breiten Elektronenstrahl abgerastert, so besteht das gemessene Signal aus einer Faltung des realen Verlaufs der Zusammensetzung und der Intensitätsverteilung

Abbildung 5.15: Ableitungen des STEM-Grauwerts und der Verläufe der drei gemessenen Aluminium-, Gallium- bzw. Indiumgehalte an der ersten Grenzfläche zwischen erster AlInN-Schicht und GaN-Pufferschicht [169].



des Elektronenstrahls. Aus der Ableitung der gemessenen Signale kann rückwirkend ein Gefühl für die Verteilung des Elektronenstrahls erhalten werden.

Wie in Abb. 5.15 zu erkennen ist, unterscheiden sich die normierten Ableitungen der gemessenen Aluminium-, Gallium- bzw. Indiumgehalte nicht voneinander. Es kann somit davon ausgegangen werden, dass sich die drei unterschiedlichen Spezies von Gruppe-III-Atomen an der jeweiligen Grenzfläche beim Ein- bzw. Ausschalten der jeweiligen Quellschicht ähnlich verhalten und das Gallium keinen parasitären Einbau zeigt. Dass sich die Halbwertsbreiten der Gruppe-III-Spezies und des Grauwerts unterscheiden, liegt in der Messung selbst begründet. Der STEM-Grauwert wird in Transmission gemessen, wodurch die zu durchdringende Materialstärke minimal ist. Die EDX-Messung geschieht jedoch in Reflexion. Hierzu muss die Probe verkippt werden, sodass die entstehende Röntgenstrahlung von einem seitlichen Detektor gemessen werden kann. Hierdurch erhöht sich wiederum die Weglänge des Elektronenstrahls in der Probe und somit auch der Einfluss des birnenförmigen angeregten Volumens auf die Genauigkeit der Messung.

Es stellt sich nun die Frage, warum bei den in Braunschweig hergestellten Proben kein Gallium in den AlInN-Schichten nachgewiesen werden kann. Die Erklärung hierfür liegt höchstwahrscheinlich in den unterschiedlichen Typen von MOVPE-Anlagen begründet. Alle zuvor vorgestellten Autoren, welche über parasitär eingebautes Gallium in die AlInN-Schichten berichten, verwenden zur Herstellung ihrer Proben sogenannte „Close Coupled Showerhead“-Anlagen. Bei diesen Anlagen werden die Ausgangsstoffe während der Epitaxie von oben über eine Art „Duschkopf“ auf die Probenoberfläche geleitet. Bei diesem Typ von Reaktor werden, um einer Belegung vorzubeugen, die Seitenteile, Deckel- und Bodenplatten geheizt. Im Fall des Horizontalreaktors der Anlage vom Typ A1x200, wie sie in Braunschweig verwendet wird, werden lediglich der Suszeptor und der Drehteller, auf wel-

chem das Substrat liegt, geheizt. Die Wände des doppelwandigen Reaktors werden durch Kühlwasser gekühlt. Der Quarzliner wird weder aktiv gekühlt noch geheizt. Aus diesem Grund desorbieren dort adsorbierte Moleküle und Atome im Verlauf von längeren Wachstumsprozessen nicht mehr so stark und tragen daher nicht zu einem parasitären Wachstum bei. Die geheizten Elemente in *Showerhead*-Reaktoren hingegen geben adsorbierte Atome in späteren Wachstumsschritten wieder frei und führen womöglich dadurch zum beobachteten parasitären Einbau von Gallium in die AlInN-Schichten. Diese Erklärung bestätigt sich in der Beobachtung von Choi *et al.*, dass mit einer Kühlung der Seitenteile - in ihrem Fall in einer *Showerhead*-Anlage - der parasitäre Einbau von Gallium verringert, aber nicht vermieden werden kann.

Es kann also bei allen Untersuchungen der in Braunschweig hergestellten Proben davon ausgegangen werden, dass es sich bei den AlInN-Schichten um reine AlInN-Schichten handelt und kein parasitäres Gallium eingebaut wird. Somit ist eine Bestimmung der Zusammensetzung mittels hochauflösender Röntgenbeugung hinreichend genau und aussagekräftig. Bei in *Showerhead*-Reaktoren hergestellten Proben ist dies nicht der Fall, denn die Zusammensetzung von quaternären Schichten kann nicht allein durch die Röntgenbeugung bewerkstelligt werden.

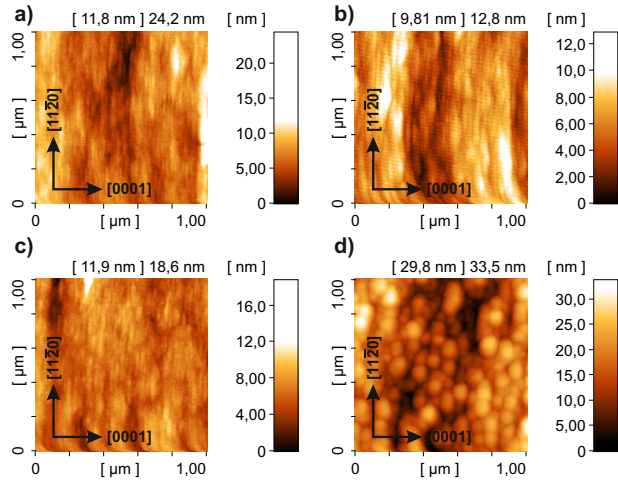
Nachdem nun die Einbaueffizienz von Indium in *m*-planare Schichten vorgestellt wurde und gezeigt ist, dass es sich bei allen in dieser Arbeit vorgestellten Proben um ternäre AlInN-Schichten handelt, sollen die Oberflächen *m*-planarer AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Richtungen der Gitteranpassung und Schichtdicken im Detail diskutiert und vorgestellt werden.

5.2.4 Die Oberflächenmorphologie *m*-orientierter AlInN-Schichten

Im Fall des *m*-orientierten AlInN auf 6H-SiC-Substraten ist eine Anisotropie der Oberflächenmorphologie in unterschiedliche Richtungen innerhalb der Wachstumsebene zu beobachten. In Abb. 5.16 a) ist die AFM-Aufnahme der Oberfläche einer unter Standardbedingungen abgeschiedene (1 $\bar{1}$ 00)-orientierte AlInN-Schicht mit einer Gitteranpassung an die *a*-Gitterkonstante des darunterliegenden GaN dargestellt. Die Schichtdicke beträgt nominell 100 nm. Die Probe weist eine streifenartige Oberflächenmorphologie entlang [11 $\bar{2}$ 0] auf. In *c*-Richtung findet eine kurzwellige Höhenmodulation statt.

Für *c*-orientiertes GaN ist bekannt, dass durch Veränderung des V/III-Verhältnisses der Wachstumsmodus beeinflusst werden kann. Unter geringen V/III-Verhältnissen wächst das GaN eher dreidimensional und nukleationsartig auf den Substraten auf. Mit der Erhöhung des V/III-Verhältnisses geht eine Erhöhung der lateralen Wachstumsrate in *a*-Richtung einher. Dies führt zu einer glatteren Oberfläche und geringeren Defektdichte [171–173]. Durch

Abbildung 5.16: AFM-Aufnahmen der Oberflächen (1 $\bar{1}$ 00)-orientierter AlInN-Schichten. Nominelle Gitteranpassung der a -Gitterkonstante mit verschiedenen V/III-Verhältnissen (a-c) und Gitteranpassung der c -Gitterkonstante unter Standardbedingungen (d). Die Schichtdicke beträgt jeweils 100 nm.



die Veränderung des V/III-Verhältnisses kann für polare Schichten also das Verhältnis der Wachstumsraten in der Ebene in a -Richtung und senkrecht dazu in Wachstumsrichtung, in diesem Fall die c -Richtung, gezielt beeinflusst werden.

Da im Fall von (1 $\bar{1}$ 00)-orientierten Schichten sowohl die a - als auch die c -Gitterkonstante in der Wachstumsebene liegen, ist es nun denkbar, dass durch die gezielte Variation des V/III-Verhältnisses die Wachstumsraten in die jeweilige Richtung beeinflusst werden können, und so die Anisotropie der Oberflächenmorphologie verringert werden kann. Daher wurden zum Vergleich zwei Proben mit unterschiedlichen V/III-Verhältnissen hergestellt. Durch Halbieren bzw. Verdoppeln der Gruppe-III-Quellflüsse wurden die V/III-Verhältnisse im Vergleich zu der unter Standardbedingungen abgeschiedenen Schicht verdoppelt bzw. entsprechend halbiert. Die Oberflächen der Proben mit doppeltem bzw. halbiertem V/III-Verhältnis sind in Abb. 5.16 b) bzw. c) abgebildet. Mit Werten von 2,2 nm (a), 2,0 nm (b) und 1,5 nm (c) unterscheiden sich die RMS-Rauheiten der drei Proben nicht signifikant voneinander und weisen keinen erkennbaren Trend mit dem V/III-Verhältnis auf. Eine Beeinflussung der Oberflächenmorphologie durch die Variation des V/III-Verhältnisses scheint somit ausgeschlossen.

Da es sich bei den hier vorgestellten Proben um nominell an die a -Gitterkonstante des darunterliegenden GaN angepasste Proben handelt, ist es denkbar, dass die Oberflächenmorphologie durch die Relaxation des Materials in die nicht gitterangepasste c -Richtung zustande kommt. In Abb. 5.16 d) ist die Oberfläche einer rund 100 nm dicken Schicht mit einer Gitteranpassung an die c -Gitterkonstante des GaN gezeigt. Mit einer RMS-Rauheit von 5,7 nm ist diese Probe deutlich rauer als die zuvor gezeigten. Ebenso unterscheidet

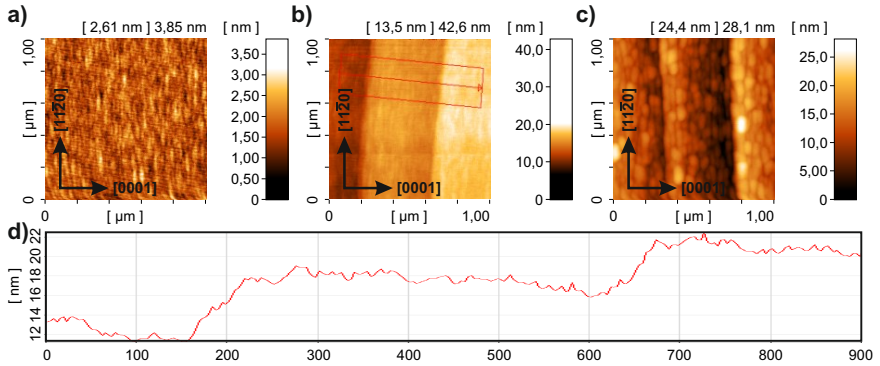


Abbildung 5.17: $(1,0 \times 1,0)\mu\text{m}^2$ AFM-Aufnahmen von AlInN-Schichten auf GaN-Pseudosubstraten. Abb. a) zeigt die Oberfläche einer nominell 50 nm dicken Schicht mit nomineller *a*-Gitteranpassung. Die Abbildungen b) und c) zeigen nominell 100 nm dicke Schichten mit *a*- bzw. *c*-Gitteranpassung. Die RMS-Rauheiten der Abbildungen a-c betragen 0,4 nm, 2,0 nm bzw. 4,3 nm. Abb. d) zeigt das integrierte Linienprofil aus Abb. b). Die Stufen sind rund 6 nm hoch.

sich diese Probe bezüglich ihrer Oberflächenmorphologie von den drei in die *a*-Richtung angepassten Proben. Es sind nicht länger streifenähnliche Strukturen mit einer Elongation entlang der *a*-Gitterkonstante zu erkennen. Vielmehr handelt es sich bei der hier gezeigten Oberfläche um eine sehr feinkörnige Oberflächenmorphologie, welche aus weitestgehend runden Strukturen gebildet wird. Diese Oberflächenmorphologie erinnert sehr an die Oberfläche von GaN-Nukleationsschichten [174]. Da sich in diesem Fall keine Umkehrung der Oberflächenmorphologie einstellt, sprich elongierte Strukturen entlang der *c*-Achse und eine kurzwellige Höhenmodulation entlang $[11\bar{2}0]$ ausbilden, kann nicht mit Sicherheit davon ausgegangen werden, dass die Oberflächenmorphologie durch die Relaxation in die entsprechende Richtung hervorgerufen wird.

Das unterschiedliche Verhalten der Oberflächenmorphologien von *a*- und *c*-gitterangepassten Schichten zeigt sich auch auf den GaN-Pseudosubstraten. In Abb. 5.17 sind in den Abbildungen a) und b) die Oberflächenmorphologien von zwei nominell *a*-gitterangepassten AlInN-Schichten mit nominellen Schichtdicken von 50 nm bzw. 100 nm gezeigt. Abb. 5.17 c) zeigt die Oberfläche einer nominell *c*-gitterangepassten Probe mit einer Schichtdicke von rund 100 nm. Während die Oberfläche aus Abb. 5.17 a) eine RMS-Rauheit von gerade einmal 0,4 nm aufweist, zeigt sich hier dennoch eine den *a*-gitterangepassten AlInN-Schichten auf 6H-SiC-Substraten ähnliche Morphologie. Auch auf den GaN-Pseudosubstraten besteht die Oberfläche aus in *a*-Richtung elongierten Strukturen. Die rund 100 nm dicke Schicht zeigt diese in *a*-Richtung elongierten Strukturen ebenfalls, auch wenn sie in diesem Fall aufgrund der sehr viel größeren Höhenskala weniger deutlich zu erkennen sind. Zusätzlich

zu den in *a*-Richtung elongierten Strukturen tritt im Fall dieser Probe eine deutliche makroskopische Stufenstruktur mit Stufenhöhen von rund 6 nm und Terrassenlängen von rund 400 nm (vgl. hierzu Abb. 5.17 b) und d)) zu Tage. Die nominell in *c*-Richtung angepasste AlInN-Schicht zeigt nicht mehr länger in *a*-Richtung elongierte Strukturen wie es die vergleichbare Probe auf einem 6H-SiC-Substrat tut. Diese Probe weist ebenfalls eine sehr feinkörnige und einer Nukleationsschicht ähnelnde Oberflächenmorphologie auf. Die rund 6 nm hohen Stufen sind auch hier zu beobachten.

Die wahrscheinlichste Erklärung für den großen Unterschied der mikroskopischen Oberflächenmorphologien der *a*- und *c*-gitterangepassten Schichten ist die Wachstumstemperatur. Die *a*-angepassten Schichten mit nominellen Indiumgehalten von 18 % werden bereits bei Wachstumstemperaturen von nur 850 °C abgeschieden. Sollen nun Indiumgehalte im Bereich von 28 % für eine Gitteranpassung der *c*-Gitterkonstante realisiert werden, so wird die Wachstumstemperatur um weitere 50 °C auf 800 °C abgesenkt. Aufgrund der damit einhergehenden Verringerung der Oberflächenmobilität der Aluminiumatome steigt die Wahrscheinlichkeit für ein dreidimensionales Wachstum, ähnlich einer Nukleationsschicht.

Unter der Annahme, dass die gesamten Oberflächen der beiden Proben aus Abb. 5.17 b) und c) von diesen sichtbaren Stufen geprägt sind, berechnen sich die möglichen Fehlorientierungen der Oberflächen in Bezug zur *m*-Richtung zu 0,9°. Hierbei würde es sich somit um einen Effekt einer fehlerhaften Herstellung der Pseudosubstrate handeln. Andererseits ist ein Effekt namens *step bunching* bekannt, wobei sich mehrere Stufen mit der Höhe einer Gitterkonstante in Wachstumsrichtung zu vielfach höheren Stufen zusammenschließen [175–177]. Dieser Effekt wird jedoch meistens für die (0001)-orientierten Flächen beobachtet. Warum die beiden 100 nm dicken Schichten solch hohe Stufen mit einer Terrassenlänge von rund 400 nm aufweisen, kann auf Basis der vorliegenden Datenlage nicht mit ausreichender Sicherheit bestimmt werden.

Nachdem nun die Oberflächen und die Einbaueffizienz von Indium in AlInN-Schichten unterschiedlicher Gitteranpassung diskutiert wurden, sollen im Folgenden die strukturellen Eigenschaften der einzelnen Schichten anhand der hochauflösenden Röntgenmessungen kurz vorgestellt werden. Hierbei sollen im Speziellen das Relaxationsverhalten eindimensional gitterangepasster Schichten, die Homogenität der Zusammensetzung und mögliche auftretende Verkipnungen oder Verscherungen der Einheitszellen vorgestellt werden.

5.2.5 Röntgenstrukturanalyse unterschiedlich eindimensional gitterangepasster Schichten

Bisher existieren in der Literatur keine Veröffentlichungen zum Relaxationsverhalten von eindimensional gitterangepasstem AlInN. Die zentrale Fragestellung für die nicht- und

semi-polaren AlInN-Schichten stellt also die Möglichkeit der Realisierbarkeit einer kontrollierten Relaxation der Schichten in einzelne Richtungen der Wachstumsebene dar. Ist es möglich abhängig von der Richtung der Gitteranpassung die jeweils senkrecht dazu stehende Richtung innerhalb der Wachstumsebene kontrolliert hin zur freistehenden Gitterkonstante relaxieren zu lassen?

Aufgrund der Tatsache, dass sowohl in polaren als auch in nichtpolaren Strukturen keine Scherkräfte auf die Wachstumsflächen einwirken, steht in diesen Strukturen das primäre (0001) Basal-Flächen-Gleitsystem nicht für den Abbau von Verspannungen zur Verfügung. Für *m*-orientiertes GaInN fanden Yoshida *et al.*, dass der bevorzugte Relaxationsmechanismus das Gleiten von zuvor bestehenden Durchstoßversetzungen in den prismatischen (10 $\bar{1}$ 0)- und (0 $\bar{1}$ 10)-Ebenen sein soll. Die Relaxation über diesen Mechanismus führt für GaInN zu einer entgegengesetzten Verkipfung der beiden Anteile auf unterschiedlichen Netzebenen in die [11 $\bar{2}$ 0]-Richtung [162]. So wurden von ihnen in Röntgenmessungen am symmetrischen (2 $\bar{2}$ 00)-Reflex mit einfallendem Röntgenstrahl parallel zu [11 $\bar{2}$ 0] zwei in entgegengesetzte Richtungen verkippte Reflexe der GaInN-Schicht beobachtet.

Abb. 5.18 a) zeigt die reziproken Gitterkarten am symmetrischen (1 $\bar{1}$ 00)-Reflex für eine nominell an die *a*-Gitterkonstante des darunterliegenden GaN angepasste AlInN-Schicht. Es ist deutlich zu erkennen, dass in der Gitterkarte mit dem einfallenden Röntgenstrahl parallel zu [11 $\bar{2}$ 0] alle Reflexe vom SiC, AlN, GaN und AlInN bei gleichen Werten für $Q_{||}$ - also in der Gitterkarte übereinander - liegen. Bei der Messung am gleichen Reflex nach einer Drehung der Probe um 90° fällt auf, dass nun das SiC, AlN und das GaN nicht länger übereinander liegen, sondern zueinander verkippt sind. Das AlInN ist unverkippt auf dem GaN aufgewachsen. Das von Yoshida *et al.* beobachtete Auftreten zweier in [11 $\bar{2}$ 0] verkippter Anteile der heteroepitaktisch abgeschiedenen Schicht ist in diesem Fall also weder für das AlN, das GaN noch für das AlInN zu beobachten. Eine Verkipfung der Schichten in *c*-Richtung ist hingegen zu beobachten.

Gleiches fällt bei Betrachtung der beiden reziproken Gitterkarten der *c*-gitterangepassten Schicht aus Abb. 5.18 b) auf. Während mit einem einfallenden Röntgenstrahl parallel zu [11 $\bar{2}$ 0] alle Schichten unverkippt aufeinander aufwachsen, weisen senkrecht dazu das AlN und das GaN eine starke Verkipfung zueinander auf. Das AlInN ist wiederholt unverkippt auf dem GaN aufgewachsen.

Der einzige Unterschied der reziproken Gitterkarten beider eindimensional gitterangepassten Schichten liegt darin, dass der Reflex des AlInN in Abb. 5.18 a) zwischen dem des AlN und dem des GaN liegt, in Abb. 5.18 b) unterhalb des GaN. Dies liegt darin begründet, dass die resultierende Gitterfehlانpassung der Probe aus a) in Richtung der *c*-Gitterkonstante negativ ist. Damit geht im Fall eines verspannten Wachstums eine Stauchung der Einheitszelle in Wachstumsrichtung einher und die AlInN-Schicht zeigt eine kleinere Gitterkonstante in

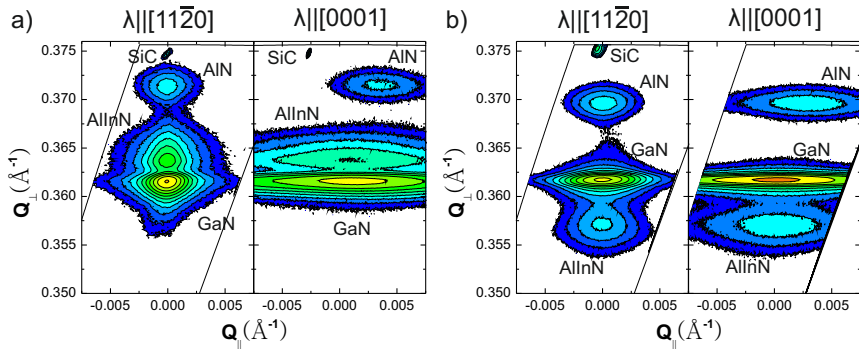


Abbildung 5.18: Reziproke Gitterkarten von m-planaren AlInN/GaN-Heterostrukturen mit unterschiedlichen Richtungen der Gitteranpassung aufgenommen um 90° zueinander gedreht entlang der beiden Hauptachsen innerhalb der Wachstumsebene. Nominell *a*-gitterangepasste AlInN-Schicht in a) und nominell *c*-gitterangepasste Schicht in b).

Wachstumsrichtung als das GaN. Der Reflex liegt somit bei größeren Werten für Q_{\perp} . Die nominell *c*-gitterangepasste Schicht aus Abb. 5.18 b) hat durch den hohen Indiumgehalt eine positive Gitterfehlانpassung der *a*-Gitterkonstante. Mit einer Verspannung in eben diese Richtung geht anschließend eine Dehnung der Einheitszelle in Wachstumsrichtung einher. Der Reflex liegt somit bei kleineren Winkeln bzw. kleineren Werten für Q_{\perp} .

Eine Aufspaltung des symmetrischen Reflexes ist für keine der drei auf dem SiC-Substrat abgeschiedenen Schichten zu beobachten. Von einem Verspannungsabbau in diesen Strukturen über ein Gleiten von Durchstoßversetzungen in den prismatischen (10 $\bar{1}$ 0)- und (0 $\bar{1}$ 10)-Flächen kann hier also nicht ausgegangen werden. Eine sichere Aussage über den tatsächlichen Relaxationsmechanismus eindimensional gitterangepasster AlInN-Schichten kann auf Basis einer reinen Untersuchung mittels hochauflösender Röntgenbeugung nicht getroffen werden.

Um sicherzustellen, dass es sich bei den hier beobachteten Effekten tatsächlich um eine Verkipfung der einzelnen heteroepitaktisch abgeschiedenen Schichten handelt, wurden mit Hilfe der hochauflösenden Röntgenbeugung die Gitterkonstanten in Richtung der drei Hauptachsen und die Winkel zwischen diesen bestimmt. In Tab. 5.3 sind die sich ergebenden Gitterkonstanten und die Winkel zwischen diesen für eine rund 50 nm dicke AlInN-Schicht mit einem Indiumgehalt von 16,8 % und die darunterliegenden AlN- bzw. GaN-Schichten aufgeführt. Unter Berücksichtigung der einzelnen Fehler liegen die Winkel der Einheitszellen aller drei Schichten bei 90°. Hierbei ist anzumerken, dass es sich bei den hier genannten Gitterkonstanten *a* und *c* um die bekannten Gitterkonstanten gleicher Benennung

Tabelle 5.3: Gitterkonstanten der drei Hauptachsen und die Winkel zwischen diesen für die drei hetero-epitaktisch abgeschiedenen Schichten AlN, GaN und *a*-gitterangepasstes AlInN mit einer Schichtdicke von 50 nm und einem Indiumgehalt von 16,8 % mit zugehörigen Fehlern [178].

	<i>a</i> (Å)	<i>b</i> (Å)	<i>c</i> (Å)	α (°)	β (°)	γ (°)
AlN	3.1051	5.4014	5.0378	90.027	89.997	89.988
±	0.0020	0.0003	0.0022	0.020	0.091	0.023
GaN	3.1751	5.5317	5.1910	89.999	90.060	89.995
±	0.0016	0.0003	0.0006	0.015	0.059	0.015
AlInN	3.1746	5.4910	5.1902	89.913	89.928	90.053
±	0.0022	0.0010	0.0024	0.075	0.225	0.070

in der Wachstumsebene handelt, *b* ist die Gitterkonstante in Wachstumsrichtung, hier also die Netzebenenabstände der *m*-orientierten Flächen parallel zur Wachstumsfläche. Der beobachtete Effekt beruht somit auf einer Verkipfung der Schichten zueinander und nicht auf einer Verscherung der jeweiligen Einheitszellen.

Des Weiteren wird deutlich, dass die AlInN-Schicht unter Berücksichtigung der Fehler sowohl die gleiche *a*- als auch die gleiche *c*-Gitterkonstante wie das darunterliegende GaN aufweist. Das AlInN ist somit trotz der negativen Gitterfehlانpassung in *c*-Richtung aufgrund der *a*-Gitteranpassung pseudomorph auf dem GaN aufgewachsen. Im Fall der *a*-Gitterkonstante können pseudomorphes Wachstum und Relaxation aufgrund der verschwindenden Gitterfehlانpassung nicht unterschieden werden. Freistehend hätte das AlInN aufgrund der Gitteranpassung der *a*-Gitterkonstante in Wachstumsrichtung die gleiche Gitterkonstante wie das GaN. Da das AlInN jedoch in der *c*-Gitterkonstante durch die negative Gitterfehlانpassung unter tensiler Verspannung steht, ist die Einheitszelle in Wachstumsrichtung gestaucht und weist daher eine kleinere Gitterkonstante als die des GaN auf.

Es handelt sich bei dem beobachteten Effekt der zueinander verkippten Reflexe der unterschiedlichen Schichten in den symmetrischen reziproken Gitterkarten also tatsächlich um Verkipfungen der Schichten und nicht um Verscherungen der Einheitszellen. Die von Yoshida *et al.* beobachtete Aufspaltung des GaInN-Reflexes durch eine entgegengesetzte Verkipfung auf den prismatischen Flächen zeigt sich hier für keine der drei Schichten.

Zu guter Letzt soll im Folgenden und letzten Abschnitt dieses Kapitels noch die Realisierbarkeit kontrolliert relaxierter eindimensional gitterangepasster AlInN-Schichten auf *m*-orientierten GaN-Schichten und -Substraten vorgestellt werden.

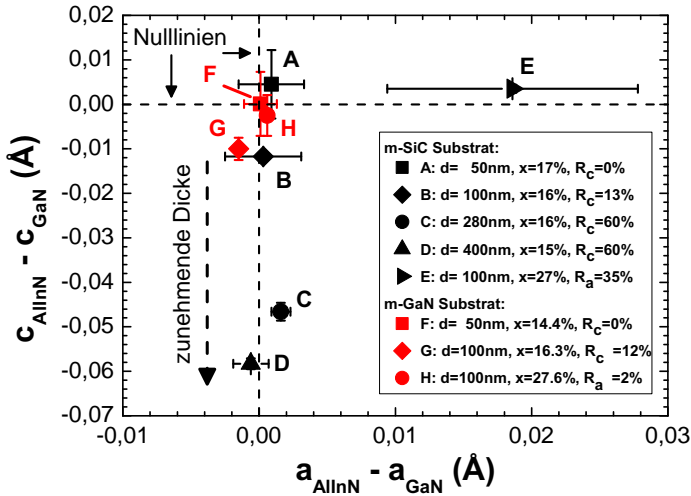


Abbildung 5.19: Unterschiede der Gitterkonstanten der AlInN- und GaN-Schichten. Mit zunehmender Schichtdicke steigt der Unterschied der Gitterkonstanten in die jeweils nicht-gitterangepasste Richtung. In die Richtung der Gitteranpassung sind die Gitterkonstanten nahezu perfekt identisch. Die Relaxationsgrade der Proben auf m-GaN Pseudosubstraten sind signifikant geringer. [179]

5.2.6 Realisierung kontrolliert relaxierter eindimensional gitterangepasster Pufferschichten

Um die Machbarkeit kontrolliert relaxierter eindimensional gitterangepasster m-orientierter AlInN-Schichten zu untersuchen, wurden zwei Serien nominell a - und c -gitterangepasster AlInN-Schichten mit unterschiedlichen Schichtdicken abgeschieden. Die erste Serie wurde auf m-planaren GaN-Pufferschichten auf m-planarem 6H-SiC abgeschieden (Abb. 5.19, schwarze Datenpunkte). Die zweite Serie besteht aus AlInN-Schichten unterschiedlicher Gitteranpassung und Dicken auf freistehenden GaN-Pseudosubstraten (Abb. 5.19, rote Datenpunkte). Der Indiumgehalt und damit die Richtung der Gitteranpassung wird hierbei über die Wachstumstemperatur eingestellt. Die Schichtdicke wird über die Wachstumsrate und die Wachstumszeit geregelt.

In Abb. 5.19 sind die Differenzen der a - und c -Gitterkonstanten der AlInN-Schichten und der jeweiligen zugehörigen GaN-Schicht gezeigt. Die gestrichelten horizontalen bzw. vertikalen Linien stellen Nulllinien dar. Liegt ein Datenpunkt auf einer der beiden Linien, so sind die entsprechenden Gitterkonstanten des AlInN und GaN identisch.

Es ist zu erkennen, dass die rund 50 nm dicke a -gitterangepasste AlInN-Schicht mit einem

Indiumgehalt von rund 17 % (Probe A, Abb. 5.19) im Rahmen der Fehlerbalken pseudomorph auf der GaN-Schicht darunter aufgewachsen ist. Die weiteren *a*-gitterangepassten AlInN-Schichten mit Indiumgehalten im Bereich von 18 % zeigen mit zunehmender Schichtdicke eine stetige Zunahme der Differenz der *c*-Gitterkonstanten der AlInN- und GaN-Schichten (Proben B-D, Abb. 5.19). Es ist also eine fortschreitende Relaxation des AlInN mit der Schichtdicke zu beobachten. Die *a*-Gitterkonstanten aller Proben sind im Bereich der Fehler identisch mit denen der zugehörigen GaN-Schichten. Wie bereits erwähnt, kann in Richtung der angepassten Gitterkonstante zwischen relaxierten und verspannten Schichten nicht unterschieden werden. Auch die *c*-gitterangepasste Schicht (Probe E, Abb. 5.19) zeigt sehr schön das erwartete Verhalten. Während die *a*-Gitterkonstanten des AlInN und GaN einen signifikanten Unterschied zueinander aufweisen, ist die angepasste *c*-Gitterkonstante des AlInN identisch mit der des GaN.

Aus den bekannten Differenzen der Gitterkonstanten der einzelnen AlInN/GaN-Schichtpaare und den freistehenden Gitterkonstanten der AlInN-Schichten bei gemessener Zusammensetzung können anschließend die Relaxationsgrade der unterschiedlichen AlInN-Schichten bestimmt werden. Die *a*-gitterangepassten Schichten mit Schichtdicken zwischen 50 nm und 400 nm weisen Relaxationsgrade der *c*-Gitterkonstante zwischen null und 60 % auf. Die *c*-gitterangepasste und 100 nm dicke Schicht zeigt mit einem Relaxationsgrad von 35 % einen höheren Wert als die vergleichbare *a*-gitterangepasste Schicht mit einem Relaxationsgrad von rund 13 %.

Die nominell *a*-gitterangepassten AlInN-Schichten auf *m*-planaren GaN-Pseudosubstraten verhalten sich ganz ähnlich wie die vergleichbaren Proben auf *m*-SiC. Die 50 nm dicke Probe (Probe F, Abb. 5.19) ist vollständig pseudomorph auf dem GaN-Substrat aufgewachsen. Die 100 nm dicke Probe (Probe G, Abb. 5.19) zeigt einen ähnlichen Relaxationsgrad wie Probe B. Die nominell *c*-gitterangepasste Probe mit einer Schichtdicke von 100 nm ist im Vergleich zur ähnlichen Probe auf *m*-SiC (Probe E) jedoch nicht relaxiert, sondern pseudomorph aufgewachsen. Dieser Unterschied liegt höchstwahrscheinlich in den unterschiedlichen Defektdichten der Substrate bzw. Unterbauten begründet. Sind bei der Relaxation der *m*-orientierten Proben wie bei den (11 $\bar{2}$ 2)-orientierten Proben bestehende Versetzungen aus dem Unterbau beteiligt, so wird auf den defektärmeren GaN-Pseudosubstraten die Relaxation der Schichten schwerer zu aktivieren sein.

Diese Ergebnisse zur Relaxation *m*-orientierter Schichten in unterschiedliche Richtungen der Wachstumsebene zeigen sehr schön, dass es möglich ist eindimensional gitterangepasste Schichten über die Schichtdicke kontrolliert relaxieren zu lassen. Auf dieser Basis wird es nun möglich eindimensional relaxierte Pufferschichten zu realisieren, welche eine gezielte Beeinflussung der optischen und strukturellen Eigenschaften von GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen ermöglichen. Durch die Relaxation *m*-orientierter Schichten zu klei-

neren Atomabständen in c -Richtung oder größeren Atomabständen in a -Richtung wird eine Einflussnahme auf die anisotrope Verspannung von GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen möglich. Um in diesen GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen höhere Indiumgehalte realisieren zu können, ohne die kritische Schichtdicke zu überschreiten, bieten sich relaxierte c -gitterangepasste AlInN-Schichten an. Diese besitzen an der Oberfläche größere Atomabstände in a -Richtung als freistehendes GaN. Die Gitterfehlانpassung des GaInN wird also herabgesetzt. Eine Beeinflussung der reinen Anisotropie der Verspannung kann sowohl durch eine gezielte Relaxation der a - als auch der c -Gitterkonstante realisiert werden.

Alle diese Ergebnisse zeigen, dass die Beeinflussung der anisotropen Verspannung und die Ermöglichung höherer Indiumgehalte in GaInN-Quantenfilmstrukturen durch die Abscheidung auf relaxierten AlInN-Pufferschichten in greifbare Nähe rücken.

6 Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit ist deutlich geworden, dass AlInN sowohl auf der polaren c-Fläche als auch auf den nicht- und semipolaren m- bzw. $(11\bar{2}2)$ -Facetten der Wurtzit-Struktur ein großes Potenzial besitzt in naher Zukunft das bisher viel genutzte AlGaIn zu ersetzen.

Mit der Entdeckung des instabilen Indiumeinbaus zu Beginn der Abscheidung von polarem AlInN wurde ein weiterer Beitrag zum Verständnis der auftretenden Probleme bei der Abscheidung von polarem AlInN geleistet. Selbstverständlich sind zu diesem Zeitpunkt noch nicht alle Möglichkeiten zur Verbesserung der Abscheidung und Qualität der Schichten ausgeschöpft. So wäre beispielsweise die gezielte Steuerung der Wachstumstemperatur zu Beginn der Abscheidung ein möglicher Ansatz dem verringerten Indiumeinbau in den ersten wenigen Nanometern entgegenzuwirken. Es ist denkbar, dass durch eine drastisch abgesenkte Temperatur zu Beginn der Abscheidung und eine rasche Anhebung der Temperatur innerhalb der ersten Minuten des Wachstums die Komposition der AlInN-Schichten dahingehend beeinflusst werden können, dass die Verarmung im Indiumgehalt zu Beginn verringert oder gar vermieden werden kann.

Die Abscheidung von eindimensional gitterangepasstem AlInN auf den nicht- und semipolaren m- bzw. $(11\bar{2}2)$ -Facetten hat gezeigt, dass es möglich ist, den Grad der Relaxation der Schichten in die nichtgitterangepassten Richtungen über die Schichtdicke zu steuern. Hierdurch wird es möglich, die Anisotropie der Verspannung innerhalb der Wachstumsebene von GaInN-Quantenfilmstrukturen auf GaN zu beeinflussen. Es haben zwar erste Versuche mit GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen stattgefunden, welche jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr berücksichtigt werden konnten. Aus diesem Grund stellt die systematische Untersuchung des Polarisationsgrades des emittierten Lichts von verspannten GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen auf unterschiedlich relaxierten eindimensional gitterangepassten AlInN-Schichten sicherlich ein interessantes und spannendes Forschungsgebiet der Zukunft dar.

Eine gezielte Relaxation der m- bzw. $(11\bar{2}2)$ -orientierten Schichten hin zu größeren Gitterkonstanten in der Wachstumsebene eröffnet die Möglichkeit für einen gesteigerten Indiumgehalt in den GaInN-Schichten innerhalb der GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen ohne die kritische Schichtdicke für das GaInN zu überschreiten. Erste Untersuchungen aufbauend auf dieser Arbeit deuten an, dass dies tatsächlich möglich ist.

Durch eine Steigerung des Indiumgehalts in den GaInN/GaN-Quantenfilmstrukturen wird so eine weitere Vergrößerung der Wellenlänge des emittierten Lichts in Richtung des grünen Spektralbereichs in LEDs möglich. Die Schließung des sogenannten „*green gap*“ könnte so in greifbare Nähe rücken.

Literaturverzeichnis

- [1] H. P. Maruska und J. J. Tietjen, *The Preparation and Properties of Vapor-Deposited Single-Crystalline GaN*, Appl. Phys. Lett. **15**, 327 (1969).
- [2] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki und Y. Toyoda, *Metalorganic vapor phase epitaxial growth of a high quality GaN film using an AlN buffer layer*, Appl. Phys. Lett. **48**, 353 (1986).
- [3] S. Nakamura, *GaN Growth Using GaN Buffer Layer*, Jpn. J. Appl. Phys. **30**, L1705 (1991).
- [4] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu und I. Akasaki, *P-Type Conduction in Mg-Doped GaN Treated with Low-Energy Electron Beam Irradiation (LEEBI)*, Jpn. J. Appl. Phys. **28**, L2112 (1989).
- [5] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh und N. Iwasa, *Thermal Annealing Effects on P-Type Mg-Doped GaN Films*, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L139 (1992).
- [6] S. Nakamura, M. Senoh und T. Mukai, *P-GaN/N-InGaN/N-GaN Double-Heterostructure Blue-Light-Emitting Diodes*, Jpn. J. Appl. Phys. **32**, L8 (1993).
- [7] T. Asano, K. Yanashima, T. Asatsuma, T. Hino, T. Yamaguchi, S. Tomiya, K. Funato, T. Kobayashi und M. Ikeda, *CW Operation of AlGaInN-GaN Laser Diodes*, Phys. Status Solidi A **176**, 23 (1999).
- [8] T. Someya und Y. Arakawa, *Highly reflective GaN/Al_{0.34}Ga_{0.66}N quarter-wave reflectors grown by metal organic chemical vapor deposition*, Appl. Phys. Lett. **73**, 3653 (1998).
- [9] R. Langer, A. Barski, J. Simon, N. T. Pelekanos, O. Kononov, R. André und L. S. Dang, *High-reflectivity GaN/GaAlN Bragg mirrors at blue/green wavelengths grown by molecular beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **74**, 3610 (1999).
- [10] K. E. Waldrip, J. Han, J. J. Figiel, H. Zhou, E. Makarona und A. V. Nurmikko, *Stress engineering during metalorganic chemical vapor deposition of AlGaIn/GaN distributed Bragg reflectors*, Appl. Phys. Lett. **78**, 3205 (2001).

- [11] N. Nakada, H. Ishikawa, T. Egawa, T. Jimbo und M. Umeno, *MOCVD growth of high reflective GaN/AlGaIn distributed Bragg reflectors*, Journal of Crystal Growth **237**, 961 (2002).
- [12] F. Natali, D. Byrne, A. Dussaigne, N. Grandjean, J. Massies und B. Damilano, *High-Al-content crack-free AlGaIn/GaN Bragg mirrors grown by molecular-beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **82**, 499 (2003).
- [13] J. F. Carlin, J. Dorsaz, C. Zellweger, S. Gradecak und M. Ilegems, *AlInN as high-index-contrast material for GaN-based optoelectronics*, International Symposium on Compound Semiconductors: Post-Conference Proceedings, 2003 (2003).
- [14] J. S. Im, H. Kollmer, J. Off, A. Sohmer, F. Scholz und A. Hangleiter, *Reduction of oscillator strength due to piezoelectric fields in GaN/Al_xGa_{1-x}N quantum wells*, Phys. Rev. B **57**, R9435 (1998).
- [15] D. Miller, D. Chemla, T. Damen, A. Gossard, W. Wiegmann, T. Wood und C. Burrus, *Band-edge electroabsorption in quantum well structures: the quantum-confined Stark effect*, Phys. Rev. Lett. **53**, 2173 (1984).
- [16] T. Langer, H. Jönen, A. Kruse, H. Bremers, U. Rossow und A. Hangleiter, *Strain-induced defects as nonradiative recombination centers in green-emitting GaInN/GaN quantum well structures*, Appl. Phys. Lett. **103**, 022108 (2013).
- [17] L. Vegard, *Die Konstitution der Mischkristalle und die Raumfüllung der Atome*, Z. Phys. **5**, 17 (1921).
- [18] J. Dorsaz, J.-F. Carlin, S. Gradecak und M. Ilegems, *Progress in AlInN-GaN Bragg reflectors: Application to a microcavity light emitting diode*, J. Appl. Phys. **97**, 084505 (2005).
- [19] A. Gadanez, J. Bläsing, A. Dadgar, C. Hums und A. Krost, *Thermal stability of metal organic vapor phase epitaxy grown AlInN*, Appl. Phys. Lett. **90**, 221906 (2007).
- [20] J. Kuzmik, *Power electronics on InAlN/(In)GaIn: Prospect for a record performance*, Electron Device Letters, IEEE **22**, 510 (2001).
- [21] A. Dadgar, F. Schulze, J. Bläsing, A. Diez, A. Krost, M. Neuburger, E. Kohn, I. Daumiller und M. Kunze, *High-sheet-charge-carrier-density AlInN/GaN field-effect transistors on Si(111)*, Appl. Phys. Lett. **85**, 5400 (2004).
- [22] Q. Y. Wei, T. Li, Y. Huang, J. Y. Huang, Z. T. Chen, T. Egawa und F. A. Ponce, *Compositional instability in InAlN/GaN lattice-matched epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **100**, 092101 (2012).

-
- [23] A. Lobanova, A. Segal, E. Yakovlev und R. Talalaev, *AllnN MOVPE: growth chemistry and analysis of trends*, J. Cryst. Growth **352**, 199 (2012).
- [24] A. D. Dräger, H. Jönen, H. Bremers, U. Rossow, P. Demolon, H. P. D. Schenk, J. Y. Duboz, B. Corbett und A. Hangleiter, *Towards green lasing: ingredients for a green laser diode based on GaInN*, Phys. Status Solidi C **6**, S792 (2009).
- [25] Z. T. Chen, K. Fujita, J. Ichikawa und T. Egawa, *Threading dislocation-governed degradation in crystal quality of heteroepitaxial materials: The case of InAlN nearly lattice-matched to GaN*, J. Appl. Phys. **111**, 053535 (2012).
- [26] G. Perillat-Merceroz, G. Cosendey, J.-F. Carlin, R. Butté und N. Grandjean, *Intrinsic degradation mechanism of nearly lattice-matched InAlN layers grown on GaN substrates*, J. Appl. Phys. **113**, 063506 (2013).
- [27] A. Redondo-Cubero, K. Lorenz, R. Gago, N. Franco, M.-A. di Forte Poisson, E. Alves und E. Munoz, *Depth-resolved analysis of spontaneous phase separation in the growth of lattice-matched AllnN*, J. Phys. D: Appl. Phys. **43**, 055406 (2010).
- [28] T. Paskova, D. Hanser und K. Evans, *GaN Substrates for III-Nitride Devices*, Proceedings of the IEEE **98**, 1324 (2010).
- [29] T. Takeuchi, H. Amano und I. Akasaki, *Theoretical Study of Orientation Dependence of Piezoelectric Effects in Wurtzite Strained GaInN/GaN Heterostructures and Quantum Wells*, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 413 (2000).
- [30] H. Jönen, H. Bremers, T. Langer, U. Rossow und A. Hangleiter, *Large optical polarization anisotropy due to anisotropic in-plane strain in m-plane GaInN quantum well structures grown on m-plane 6H-SiC*, Appl. Phys. Lett. **100**, 151905 (2012).
- [31] G. Popovici, H. Morkoc und S. N. Mohammad, in *Group III Nitride Semiconductor Compounds: Physics and Applications*, edited by B. Gil (Oxford University Press, New York, 1998), Chap. 2: Deposition and properties of group III nitrides by molecular beam epitaxy, pp. 19–69.
- [32] P. Perlin, C. Jaubertie-Carillon, J. P. Itie, A. San Miguel, I. Grzegory und A. Polian, *Raman scattering and x-ray-absorption spectroscopy in gallium nitride under high pressure*, Phys. Rev. B **45**, 83 (1992).
- [33] W. Paszkowicz, S. Podsiadlo und R. Minikayev, *Rietveld-refinement study of aluminium and gallium nitrides*, J. Alloys Compd. **382**, 100 (2004).
- [34] V. Darakchieva, B. Monemar und A. Usui, *On the lattice parameters of GaN*, Appl. Phys. Lett. **91**, 031911 (2007).

- [35] W. Paszkowicz, R. Černý und S. Krukowski, *Rietveld refinement for indium nitride in the 105 - 295 K range*, Powder Diffr. **18**, 114 (2003).
- [36] F. Bernardini, V. Fiorentini und D. Vanderbilt, *Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides*, Phys. Rev. B **56**, R10024 (1997).
- [37] F. A. Ponce, D. P. Bour, W. T. Young, M. Saunders und J. W. Steeds, *Determination of lattice polarity for growth of GaN bulk single crystals and epitaxial layers*, Appl. Phys. Lett. **69**, 337 (1996).
- [38] J. Nye, *Physical Properties of Crystals: Their Representation by Tensors and Matrices* (Clarendon Press, Oxford, 1957).
- [39] S.-H. Park und S.-L. Chuang, *Crystal-orientation effects on the piezoelectric field and electronic properties of strained wurtzite semiconductors*, Phys. Rev. B **59**, 4725 (1999).
- [40] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München-Wien, 2006).
- [41] F. C. Frank und J. H. van der Merwe, *One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **198**, 205 (1949).
- [42] F. C. Frank und J. H. van der Merwe, *One-Dimensional Dislocations. II. Misfitting Monolayers and Oriented Overgrowth*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **198**, 216 (1949).
- [43] F. C. Frank und J. H. van der Merwe, *One-Dimensional Dislocations. III. Influence of the Second Harmonic Term in the Potential Representation, on the Properties of the Model*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **200**, 125 (1949).
- [44] J. H. van Der Merwe, *Crystal Interfaces. Part I. SemiInfinite Crystals*, J. Appl. Phys. **34**, 117 (1963).
- [45] W. A. Jesser und J. H. van der Merwe, *An exactly solvable model for calculating critical misfit and thickness in epitaxial superlattices. II. Layers of unequal elastic constants and thicknesses*, J. Appl. Phys. **63**, 1928 (1988).
- [46] J. Matthews und A. Blakeslee, *Defects in epitaxial multilayers: I. Misfit dislocations*, J. Cryst. Growth **27**, 118 (1974).
- [47] S. Srinivasan, L. Geng, R. Liu, F. A. Ponce, Y. Narukawa und S. Tanaka, *Slip systems and misfit dislocations in InGaN epilayers*, Appl. Phys. Lett. **83**, 5187 (2003).
- [48] A. E. Romanov, E. C. Young, F. Wu, A. Tyagi, C. S. Gallinat, S. Nakamura, S. P. DenBaars und J. S. Speck, *Basal plane misfit dislocations and stress relaxation in III-nitride semipolar heteroepitaxy*, J. Appl. Phys. **109**, 103522 (2011).

- [49] U. W. Pohl, *Epitaxy of Semiconductors, Graduate Texts in Physics* (Springer, Berlin Heidelberg, 2013).
- [50] J. P. Hirth und J. Lothe, *Theory of dislocations* (Wiley, New York, 1982).
- [51] T. Metzger, R. Höpler, E. Born, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Stömmers, M. Schuster, H. Göbel, S. Christiansen, M. Albrecht und H. P. Strunk, *Defect structure of epitaxial GaN films determined by transmission electron microscopy and triple-axis X-ray diffractometry*, Philos. Mag. A **77**, 1013 (1998).
- [52] E. Silveira, J. Freitas, S. Schujman und L. Schowalter, *AlN bandgap temperature dependence from its optical properties*, J. Cryst. Growth **310**, 4007 (2008).
- [53] J. F. Muth, J. H. Lee, I. K. Shmagin, R. M. Kolbas, H. C. Casey, B. P. Keller, U. K. Mishra und S. P. DenBaars, *Absorption coefficient, energy gap, exciton binding energy, and recombination lifetime of GaN obtained from transmission measurements*, Appl. Phys. Lett. **71**, 2572 (1997).
- [54] A. A. Klochikhin, V. Y. Davydov, V. V. Emtsev, A. V. Sakharov, V. A. Kapitonov, B. A. Andreev, H. Lu und W. J. Schaff, *Acceptor states in the photoluminescence spectra of n-InN*, Phys. Rev. B **71**, 195207 (2005).
- [55] K. Osamura, S. Naka und Y. Murakami, *Preparation and optical properties of Ga_{1-x}In_xN thin films*, J. Appl. Phys. **46**, 3432 (1975).
- [56] N. Puychevriier und M. Menoret, *Synthesis of III-V semiconductor nitrides by reactive cathodic sputtering*, Thin Solid Films **36**, 141 (1976).
- [57] T. L. Tansley und C. P. Foley, *Optical band gap of indium nitride*, J. Appl. Phys. **59**, 3241 (1986).
- [58] K. Westra und M. Brett, *Near IR optical properties of sputtered InN films*, Thin Solid Films **192**, 227 (1990).
- [59] T. Inushima, V. Mamutin, V. Vekshin, S. Ivanov, T. Sakon, M. Motokawa und S. Ohoya, *Physical properties of InN with the band gap energy of 1.1 eV*, J. Cryst. Growth **227-228**, 481 (2001).
- [60] V. Davydov, A. Klochikhin, R. Seisyan, V. Emtsev, S. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova und J. Graul, *Absorption and Emission of Hexagonal InN. Evidence of Narrow Fundamental Band Gap*, Phys. Status Solidi B **229**, r1 (2002).
- [61] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, Y. Saito und Y. Nanishi, *Unusual properties of the fundamental band gap of InN*, Appl. Phys. Lett. **80**, 3967 (2002).

- [62] T. Matsuoka, H. Okamoto, M. Nakao, H. Harima und E. Kurimoto, *Optical bandgap energy of wurtzite InN*, Appl. Phys. Lett. **81**, 1246 (2002).
- [63] V. Davydov, A. Klochikhin, V. Emtsev, D. Kurdyukov, S. Ivanov, V. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, J. Aderhold, J. Graul, A. Mudryi, H. Harima, A. Hashimoto, A. Yamamoto und E. Haller, *Band Gap of Hexagonal InN and InGaN Alloys*, Phys. Status Solidi B **234**, 787 (2002).
- [64] V. Davydov, A. Klochikhin, V. Emtsev, S. Ivanov, V. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A. Mudryi, A. Hashimoto, A. Yamamoto, J. Aderhold, J. Graul und E. Haller, *Band Gap of InN and In-Rich $\text{In}_x\text{xGa}_{1-x}\text{N}$ alloys ($0.36 \leq x \leq 1$)*, Phys. Status Solidi B **230**, R4 (2002).
- [65] J. A. Van Vechten und T. K. Bergstresser, *Electronic Structures of Semiconductor Alloys*, Phys. Rev. B **1**, 3351 (1970).
- [66] J. Wu, W. Walukiewicz, K. Yu, J. A. III, S. Li, E. Haller, H. Lu und W. J. Schaff, *Universal bandgap bowing in group-III nitride alloys*, Solid State Commun. **127**, 411 (2003).
- [67] R. Goldhahn, P. Schley, A. Winzer, G. Gobsch, V. Cimalla, O. Ambacher, M. Rakel, C. Cobet, N. Esser, H. Lu und W. Schaff, *Detailed analysis of the dielectric function for wurtzite InN and In-rich InAlN alloys*, Phys. Status Solidi A **203**, 42 (2006).
- [68] R. E. Jones, R. Broesler, K. M. Yu, J. W. Ager, III, E. E. Haller, W. Walukiewicz, X. Chen und W. J. Schaff, *Band gap bowing parameter of $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$* , J. Appl. Phys. **104**, 123501 (2008).
- [69] T. Aschenbrenner, H. Dartsch, C. Kruse, M. Anastasescu, M. Stoica, M. Gartner, A. Pretorius, A. Rosenauer, T. Wagner und D. Hommel, *Optical and structural characterization of AlInN layers for optoelectronic applications*, J. Appl. Phys. **108**, 063533 (2010).
- [70] E. Sakalauskas, H. Behmenburg, C. Hums, P. Schley, G. Rossbach, C. Giesen, M. Heuken, H. Kalisch, R. H. Jansen, J. Bläsing, A. Dadgar, A. Krost und R. Goldhahn, *Dielectric function and optical properties of Al-rich AlInN alloys pseudomorphically grown on GaN*, J. Phys. D: Appl. Phys. **43**, 365102 (2010).
- [71] S. Schulz, M. A. Caro, L.-T. Tan, P. J. Parbrook, R. W. Martin und E. P. O'Reilly, *Composition-Dependent Band Gap and Band-Edge Bowing in AlInN: A Combined Theoretical and Experimental Study*, Appl. Phys. Express **6**, 121001 (2013).
- [72] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. A. III, E. E. Haller, H. Lu und W. J. Schaff, *Small band gap bowing in $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{N}$ alloys*, Appl. Phys. Lett. **80**, 4741 (2002).

- [73] G. Franssen, I. Gorczyca, T. Suski, A. Kamińska, J. Pereiro, E. Muñoz, E. Iliopoulos, A. Georgakilas, S. B. Che, Y. Ishitani, A. Yoshikawa, N. E. Christensen und A. Svane, *Bowing of the band gap pressure coefficient in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ alloys*, J. Appl. Phys. **103**, 033514 (2008).
- [74] M. Moret, B. Gil, S. Ruffenach, O. Briot, C. Giesen, M. Heuken, S. Rushworth, T. Leese und M. Succi, *Optical, structural investigations and band-gap bowing parameter of GaInN alloys*, J. Cryst. Growth **311**, 2795 (2009).
- [75] M. Hiroki, Y. Oda, N. Watanabe, N. Maeda, H. Yokoyama, K. Kumakura und H. Yamamoto, *Unintentional Ga incorporation in metalorganic vapor phase epitaxy of In-containing III-nitride semiconductors*, J. Cryst. Growth **382**, 36 (2013).
- [76] S. Choi, H. J. Kim, Z. Lochner, J. Kim, R. D. Dupuis, A. M. Fischer, R. Juday, Y. Huang, T. Li, J. Y. Huang, F. A. Ponce und J.-H. Ryou, *Origins of unintentional incorporation of gallium in AlInN layers during epitaxial growth, part I: Growth of AlInN on AlN and effects of prior coating*, J. Cryst. Growth **388**, 137 (2014).
- [77] J. Kim, Z. Lochner, M.-H. Ji, S. Choi, H. J. Kim, J. S. Kim, R. D. Dupuis, A. M. Fischer, R. Juday, Y. Huang, T. Li, J. Y. Huang, F. A. Ponce und J.-H. Ryou, *Origins of unintentional incorporation of gallium in InAlN layers during epitaxial growth, part II: Effects of underlying layers and growth chamber conditions*, J. Cryst. Growth **388**, 143 (2014).
- [78] M. D. Smith, E. Taylor, T. C. Sadler, V. Z. Zubialevich, K. Lorenz, H. N. Li, J. O'Connell, E. Alves, J. D. Holmes, R. W. Martin und P. J. Parbrook, *Determination of Ga auto-incorporation in nominal InAlN epilayers grown by MOCVD*, J. Mater. Chem. C **2**, 5787 (2014).
- [79] E. Taylor, M. Smith, T. Sadler, K. Lorenz, H. Li, E. Alves, P. Parbrook und R. Martin, *Structural and optical properties of Ga auto-incorporated InAlN epilayers*, J. Cryst. Growth **408**, 97 (2014).
- [80] B. Monemar, J. Bergman, I. Buyanova, W. Li, H. Amano und I. Akasaki, *Free Excitons in GaN* , MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **1**, 2 (1996).
- [81] H. Morkoç, F. Hamdani und A. Salvador, in *Gallium Nitride (GaN) I*, Vol. 50 of *Semiconductors and Semimetals*, edited by T. Moustakas und J. Pankove (Acad. Press., San Diego, 1998), Chap. 8: Electronic and Optical Properties of III-V Nitride based Quantum Wells and Superlattices, pp. 193–257.
- [82] Die Simulationen der Bandstrukturen und Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der polaren c-orientierten und nichtpolaren m-orientierten Proben wurden von Herrn Fedor Alexej Ketzer an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.

- [83] A. Hangleiter, *Optical properties of nitride heterostructures*, Phys. Status Solidi C **0**, 1816 (2003).
- [84] J. Creighton, *Vapor pressures of the adducts formed during AlGaIn organometallic vapor-phase epitaxy*, J. Electron. Mater. **31**, 1337 (2002).
- [85] G. Stringfellow, *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice* (Acad. Press., San Diego, 1999), Vol. 2.
- [86] W. H. Bragg und W. L. Bragg, *The Reflection of X-rays by Crystals*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **88**, 428 (1913).
- [87] H. Jönen, *Wachstum und Charakterisierung von (Al,Ga,In)N-Heterostrukturen mit verschiedenen Kristallorientierungen für langwellige Lichtemitter* (Shaker Verlag, Aachen, 2013), Vol. 1.
- [88] D. Fuhrmann, H. Jönen, L. Hoffmann, H. Bremers, U. Rossow und A. Hangleiter, *High quality, high efficiency and ultrahigh In-content InGaIn QWs - the problem of thermal stability*, Phys. Status Solidi C **5**, 1662 (2008).
- [89] J.-F. Carlin und M. Ilegems, *High-quality AlInN for high index contrast Bragg mirrors lattice matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. **83**, 668 (2003).
- [90] Die Simulationen der Verläufe von Brechungsindex und optischer Welle wurden von Daniel Dräger an der TU Braunschweig durchgeführt.
- [91] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh und T. Mukai, *Hole Compensation Mechanism of P-Type GaN Films*, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, 1258 (1992).
- [92] Y. Taniyasu, M. Kasu und T. Makimoto, *An aluminium nitride light-emitting diode with a wavelength of 210 nanometres*, Nature **441**, 325 (2006).
- [93] R. E. Jones, K. M. Yu, S. X. Li, W. Walukiewicz, J. W. Ager, E. E. Haller, H. Lu und W. J. Schaff, *Evidence for p-Type Doping of InN*, Phys. Rev. Lett. **96**, 125505 (2006).
- [94] A.-T. Cheng, Y.-K. Su und W.-C. Lai, *Improved Light Output of Nitride-Based Light-Emitting Diodes by Lattice-Matched AlInN Cladding Structure*, IEEE Photon. Technol. Lett **20**, 970 (2008).
- [95] S. Choi, H. J. Kim, S.-S. Kim, J. Liu, J. Kim, J.-H. Ryou, R. D. Dupuis, A. M. Fischer und F. A. Ponce, *Improvement of peak quantum efficiency and efficiency droop in III-nitride visible light-emitting diodes with an InAlN electron-blocking layer*, Appl. Phys. Lett. **96**, 221105 (2010).

- [96] Y. Taniyasu, J.-F. Carlin, A. Castiglia, R. Butté und N. Grandjean, *Mg doping for p-type AlInN lattice-matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. **101**, 082113 (2012).
- [97] O. Ambacher, M. S. Brandt, R. Dimitrov, T. Metzger, M. Stutzmann, R. A. Fischer, A. Miehr, A. Bergmaier und G. Dollinger, *Thermal stability and desorption of Group III nitrides prepared by metal organic chemical vapor deposition*, J. Vac. Sci. Technol., B **14**, 3532 (1996).
- [98] H. P. D. Schenk, P. de Mierry, M. Läubg, F. Omnès, M. Leroux, B. Beaumont und P. Gibart, *Indium incorporation above 800°C during metalorganic vapor phase epitaxy of InGaN*, Appl. Phys. Lett. **75**, 2587 (1999).
- [99] M. Bosi und R. Fornari, *A study of Indium incorporation efficiency in InGaN grown by MOVPE*, J. Cryst. Growth **265**, 434 (2004).
- [100] S. Guo, X. Gao, D. Gorka, J. W. Chung, H. Wang, T. Palacios, A. Crespo, J. K. Gillespie, K. Chabak, M. Trejo, V. Miller, M. Bellot, G. Via, M. Kossler, H. Smith und D. Tomich, *AlInN HEMT grown on SiC by metalorganic vapor phase epitaxy for millimeter-wave applications*, Phys. Status Solidi A **207**, 1348 (2010).
- [101] H. P. D. Schenk, M. Nemoz, M. Korytov, P. Vennéguès, A. D. Dräger und A. Hangleiter, *Indium incorporation dynamics into AlInN ternary alloys for laser structures lattice matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. **93**, 081116 (2008).
- [102] Der Datenpunkt bei einer Temperatur von $T = 845^\circ\text{C}$ und einem Indiumgehalt von 17,4% basiert auf Messungen von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig.
- [103] C. B. Alcock, V. P. Itkin und M. K. Horrigan, *Vapour Pressure Equations for the Metallic Elements: 298-2500K*, Can. Metall. Q. **23**, 309 (1984).
- [104] F. Scholz, A. Sohmer, J. Off, V. Syganow, A. Dörnen, J.-S. Im, A. Hangleiter und H. Lakner, *In incorporation efficiency and composition fluctuations in MOVPE grown GaInN/GaN hetero structures and quantum wells*, Mater. Sci. Eng., B **50**, 238 (1997).
- [105] A. Sohmer, J. Off, H. Bolay, V. Härle, V. Syganow, J. Seo Im, V. Wagner, F. Adler, A. Hangleiter, A. Dörnen, F. Scholz, D. Brunner, O. Ambacher und H. Lakner, *GaInN/GaN-Heterostructures and Quantum Wells Grown by Metalorganic Vapor-Phase Epitaxy*, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **2**, 14 (1997).
- [106] E. L. Piner, M. K. Behbehani, N. A. El-Masry, F. G. McIntosh, J. C. Roberts, K. S. Boutros und S. M. Bedair, *Effect of hydrogen on the indium incorporation in InGaN epitaxial films*, Appl. Phys. Lett. **70**, 461 (1997).

- [107] J. E. Northrup, *Impact of hydrogen on indium incorporation at m-plane and c-plane $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{N}$ surfaces: First-principles calculations*, Phys. Rev. B **79**, 041306 (2009).
- [108] Die roten Datenpunkte und der schwarze Datenpunkt bei einer Temperatur von $T = 845^\circ\text{C}$ und einem Indiumgehalt von 17,4% basieren auf Messungen von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig.
- [109] Die Messungen mittels spektroskopischer Ellipsometrie wurden von Egidijus Sakalauskas (TU Ilmenau) am BESSY in Berlin durchgeführt.
- [110] J.-F. Carlin, C. Zellweger, J. Dorsaz, S. Nicolay, G. Christmann, E. Feltin, R. Butté und N. Grandjean, *Progresses in III-nitride distributed Bragg reflectors and microcavities using AlInN/GaN materials*, Phys. Status Solidi B **242**, 2326 (2005).
- [111] T. C. Sadler, M. J. Kappers und R. A. Oliver, *The impact of hydrogen on indium incorporation and surface accumulation in InAlN epitaxy*, J. Cryst. Growth **331**, 4 (2011).
- [112] G. B. Stringfellow, *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy* (Acad. Press., San Diego, 1999), pp. 151 – 209.
- [113] X. H. Wu, C. R. Elsass, A. Abare, M. Mack, S. Keller, P. M. Petroff, S. P. DenBaars, J. S. Speck und S. J. Rosner, *Structural origin of V-defects and correlation with localized excitonic centers in InGaN/GaN multiple quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **72**, 692 (1998).
- [114] Y. Chen, T. Takeuchi, H. Amano, I. Akasaki, N. Yamada, Y. Kaneko und S. Y. Wang, *Pit formation in GaInN quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **72**, 710 (1998).
- [115] J. E. Northrup, L. T. Romano und J. Neugebauer, *Surface energetics, pit formation, and chemical ordering in InGaN alloys*, Appl. Phys. Lett. **74**, 2319 (1999).
- [116] Die Einzellinienmessung und die Erstellung der reziproken Gitterkarte dieser Probe wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [117] Die Messung des symmetrischen Röntgenprofils dieser Probe wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [118] Z. L. Miao, T. J. Yu, F. J. Xu, J. Song, C. C. Huang, X. Q. Wang, Z. J. Yang, G. Y. Zhang, X. P. Zhang, D. P. Yu und B. Shen, *The origin and evolution of V-defects in $\text{In}_x\text{Al}_{1-x}\text{N}$ epilayers grown by metalorganic chemical vapor deposition*, Appl. Phys. Lett. **95**, 231909 (2009).

- [119] Die Messungen der reziproken Gitterkarte und der zugehörigen symmetrischen Messung dieser Probe wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [120] Software: „Epitaxy and Smoothfit“, Version: 4.3, vertrieben von PANalytical B.V., Almelo, Niederlande.
- [121] J. E. Northrup und C. G. Van de Walle, *Indium versus hydrogen-terminated GaN(0001) surfaces: Surfactant effect of indium in a chemical vapor deposition environment*, Appl. Phys. Lett. **84**, 4322 (2004).
- [122] G. Cosendey, J.-F. Carlin, N. A. K. Kaufmann, R. Butté und N. Grandjean, *Strain compensation in AlInN/GaN multilayers on GaN substrates: Application to the realization of defect-free Bragg reflectors*, Appl. Phys. Lett. **98**, 181111 (2011).
- [123] J. Massies, F. Turco, A. Saletes und J. Contour, *Experimental evidence of difference in surface and bulk compositions of $Al_xGa_{1-x}As$, $Al_xIn_{1-x}As$ and $Ga_xIn_{1-x}As$ epitaxial layers grown by molecular beam epitaxy*, J. Cryst. Growth **80**, 307 (1987).
- [124] K. Muraki, S. Fukatsu, Y. Shiraki und R. Ito, *Surface segregation of In atoms during molecular beam epitaxy and its influence on the energy levels in InGaAs/GaAs quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **61**, 557 (1992).
- [125] Die Bestimmung der Indiumgehalte der Proben BS2460, BS2462, BS2468 und BS2479 wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [126] Die Messung der reziproken Gitterkarte dieser Probe wurde von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [127] C. Berger, P. Moser, A. Dadgar, J. Bläsing, R. Clos und A. Krost, *Strain profiling of AlInN/GaN distributed Bragg reflectors using in situ curvature measurements and ex situ X-ray diffraction*, Mater. Sci. Eng., A **528**, 58 (2010).
- [128] F. Scholz, *Semipolar GaN grown on foreign substrates: a review*, Semicond. Sci. Technol. **27**, 024002 (2012).
- [129] R. M. Farrell, E. C. Young, F. Wu, S. P. DenBaars und J. S. Speck, *Materials and growth issues for high-performance nonpolar and semipolar light-emitting devices*, Semicond. Sci. Technol. **27**, 024001 (2012).
- [130] C.-C. Chen, C.-H. Chiu, S.-P. Chang, M. H. Shih, M.-Y. Kuo, J.-K. Huang, H.-C. Kuo, S.-P. Chen, L.-L. Lee und M.-S. Jeng, *Large-area ultraviolet GaN-based photonic quasicrystal laser with high-efficiency green color emission of semipolar 10-11 In_{0.3}Ga_{0.7}N/GaN multiple quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **102**, 011134 (2013).

- [131] S. Takagi, Y. Enya, T. Kyono, M. Adachi, Y. Yoshizumi, T. Sumitomo, Y. Yamana-
ka, T. Kumano, S. Tokuyama, K. Sumiyoshi, N. Saga, M. Ueno, K. Katayama, T.
Ikegami, T. Nakamura, K. Yanashima, H. Nakajima, K. Tasai, K. Naganuma, N. Fu-
utagawa, Y. Takiguchi, T. Hamaguchi und M. Ikeda, *High-Power (over 100 mW)
Green Laser Diodes on Semipolar 2021 GaN Substrates Operating at Wavelengths
beyond 530 nm*, Appl. Phys. Express **5**, 082102 (2012).
- [132] D. Sizov, R. Bhat, A. Heberle, N. Visovsky und C. Zah, *True-green (11-22) plane
optically pumped laser with cleaved m-plane facets*, Appl. Phys. Lett. **99**, 041117
(2011).
- [133] M. R. Laskar, T. Ganguli, A. A. Rahman, A. Arora, N. Hatui, M. R. Gokhale, S.
Ghosh und A. Bhattacharya, *Anisotropic structural and optical properties of a-plane
(11 $\bar{2}$ 0) AlInN nearly-lattice-matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. **98**, 181108 (2011).
- [134] E. Sakalauskas, M. Wieneke, A. Dadgar, G. Gobsch, A. Krost und R. Goldhahn,
Optical anisotropy of a-plane Al_{0.8}In_{0.2}N grown on an a-plane GaN pseudosubstrate,
Phys. Status Solidi A **209**, 29 (2012).
- [135] T. Kajima, A. Kobayashi, K. Ueno, K. Shimomoto, T. Fujii, J. Ohta, H. Fujioka und
M. Oshima, *Room-Temperature Epitaxial Growth of High-Quality m -Plane InAlN
Films on Nearly Lattice-Matched ZnO Substrates*, Jpn. J. Appl. Phys. **49**, 070202
(2010).
- [136] T. Kajima, A. Kobayashi, K. Ueno, J. Ohta, H. Fujioka und M. Oshima, *Struc-
tural Properties of m-Plane InAlN Films Grown on ZnO Substrates with Room-
Temperature GaN Buffer Layers*, Appl. Phys. Express **6**, 021003 (2013).
- [137] S. F. Chichibu, K. Hazu, K. Furusawa, Y. Ishikawa, T. Onuma, T. Ohtomo, H. Ikeda
und K. Fujito, *High internal quantum efficiency ultraviolet to green luminescence
peaks from pseudomorphic m-plane Al_{1-x}In_xN epilayers grown on a low defect den-
sity m-plane freestanding GaN substrate*, J. Appl. Phys. **116**, 213501 (2014).
- [138] E. R. Buß, U. Rossow, H. Bremers, T. Meisch, M. Caliebe, F. Scholz und A.
Hangleiter, *Intentional anisotropic strain relaxation in (11 $\bar{2}$ 2) oriented Al_{1-x}In_xN
one-dimensionally lattice matched to GaN*, Appl. Phys. Lett. (2014).
- [139] N. Hatui, M. Frentrop, A. A. Rahman, A. Kadir, S. Subramanian, M. Kneissl und A.
Bhattacharya, *MOVPE growth of semipolar Al_{1-x}In_xN across the alloy composition
range (0 ≤ x ≤ 0.55)*, J. Cryst. Growth **411**, 106 (2015).
- [140] N. Okada, A. Kurisu, K. Murakami und K. Tadatomo, *Growth of Semipolar (1122)
GaN Layer by Controlling Anisotropic Growth Rates in r -Plane Patterned Sapphire
Substrate*, Appl. Phys. Express **2**, 091001 (2009).

- [141] P. de Mierry, N. Kriouche, M. Nemoz, S. Chenot und G. Nataf, *Semipolar GaN films on patterned r-plane sapphire obtained by wet chemical etching*, Appl. Phys. Lett. **96**, 231918 (2010).
- [142] S. Schwaiger, S. Metzner, T. Wunderer, I. Argut, J. Thalmeier, F. Lipski, M. Wieneke, J. Bläsing, F. Bertram, J. Zweck, A. Krost, J. Christen und F. Scholz, *Growth and coalescence behavior of semipolar (11 $\bar{2}$ 2) GaN on pre-structured r-plane sapphire substrates*, Phys. Status Solidi B **248**, 588 (2011).
- [143] M. Caliebe, T. Meisch, B. Neuschl, S. Bauer, J. Helbing, D. Beck, K. Thonke, M. Klein, D. Heinz und F. Scholz, *Improvements of MOVPE grown (11 $\bar{2}$ 2) oriented GaN on pre-structured sapphire substrates using a SiNx interlayer and HVPE overgrowth*, Phys. Status Solidi C **11**, 525 (2014).
- [144] S. Lazarev, S. Bauer, T. Meisch, M. Bauer, I. Tischer, M. Barchuk, K. Thonke, V. Holy, F. Scholz und T. Baumbach, *Three-dimensional reciprocal space mapping of diffuse scattering for the study of stacking faults in semipolar (11 $\bar{2}$ 2) GaN layers grown from the sidewall of an r-patterned sapphire substrate*, J. Appl. Crystallogr. **46**, 1425 (2013).
- [145] Diese Aufnahme mittels Rasterelektronenmikroskopie wurde freundlicherweise von Frau Diana Deuse am Institut für Angewandte Physik der Technischen Universität Braunschweig angefertigt.
- [146] I.-H. Kim, H.-S. Park, Y.-J. Park und T. Kim, *Formation of V-shaped pits in In-GaN/GaN multiquantum wells and bulk InGaN films*, Appl. Phys. Lett. **73**, 1634 (1998).
- [147] Die Messungen der Proben bei Temperaturen von 840 °C und 810 °C mit Indiumgehalten von 19,8 %, 18,0 %, 25,6 % und 26,5 % wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [148] T. Wernicke, V. Hoffmann, C. Netzel, H.-J. Möstl, L. Schade, H. Wenzel, S. Ploch, J. Rass, A. Knauer, U. Schwarz, M. Weyers und M. Kneissl, *Indium incorporation in InGaN quantum wells on nonpolar (10 $\bar{1}$ 0), semipolar (10 $\bar{1}$ 1), (10 $\bar{1}$ 2), (11 $\bar{2}$ 2) and polar (0001) GaN substrates*, Abstract Book of ICNS-8, Jeju, Korea (2009).
- [149] Diese Aufnahme mittels Rasterelektronenmikroskopie wurde freundlicherweise von Frau Diana Deuse am Institut für Angewandte Physik der Technischen Universität Braunschweig angefertigt.
- [150] Die Messungen der Proben A und B wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.

- [151] A. Tyagi, F. Wu, E. C. Young, A. Chakraborty, H. Ohta, R. Bhat, K. Fujito, S. P. DenBaars, S. Nakamura und J. S. Speck, *Partial strain relaxation via misfit dislocation generation at heterointerfaces in (Al,In)GaN epitaxial layers grown on semipolar (11 $\bar{2}$ 2) GaN free standing substrates*, Appl. Phys. Lett. **95**, 251905 (2009).
- [152] E. C. Young, F. Wu, A. E. Romanov, A. Tyagi, C. S. Gallinat, S. P. DenBaars, S. Nakamura und J. S. Speck, *Lattice Tilt and Misfit Dislocations in (11 $\bar{2}$ 2) Semipolar GaN Heteroepitaxy*, Appl. Phys. Express **3**, 011004 (2010).
- [153] Die Messungen der in schwarz und rot dargestellten Proben wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [154] Die Messungen der Proben E und F wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [155] M. Caliebe, T. Meisch, M. Madel und F. Scholz, *Effects of miscut of prestructured sapphire substrates and {MOVPE} growth conditions on oriented GaN*, J. Cryst. Growth **414**, 100 (2015).
- [156] Die Messung der Probe E wurde von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [157] Die Messungen der Proben A, B, E und F wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [158] K. Hiramatsu, Y. Kawaguchi, M. Shimizu, N. Sawaki, T. Zheleva, R. F. Davis, H. Tsuda, W. Taki, N. Kuwano und K. Oki, *The Composition Pulling Effect in MOVPE Grown InGaN on GaN and AlGaIn and its TEM Characterization*, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **2**, 6 (1997).
- [159] M. Shimizu, Y. Kawaguchi, K. Hiramatsu und N. Sawaki, *MOVPE growth of thick homogeneous InGaIn directly on sapphire substrate using AlN buffer layer*, Solid-State Electron. **41**, 145 (1997).
- [160] Y.-L. Tsai, C.-L. Wang, P.-H. Lin, W.-T. Liao und J.-R. Gong, *Observation of compositional pulling phenomenon in $Al_xGa_{1-x}N$ ($0.4 \leq x \leq 1.0$) films grown on (0001) sapphire substrates*, Appl. Phys. Lett. **82**, 31 (2003).
- [161] H. Lin, Y. Chen, T. Lin, C. Shih, K. Liu und N. Chen, *Direct evidence of compositional pulling effect in $Al_xGa_{1-x}N$ epilayers*, J. Cryst. Growth **290**, 225 (2006).
- [162] S. Yoshida, T. Yokogawa, Y. Imai, S. Kimura und O. Sakata, *Evidence of lattice tilt and slip in m-plane InGaIn/GaN heterostructure*, Appl. Phys. Lett. **99**, 131909 (2011).

- [163] M. Stockmeier, S. A. Sakwe, P. Hens, P. J. Wellmann, R. Hock und A. Magerl, *Thermal Expansion Coefficients of 6H Silicon Carbide*, Mater. Sci. Forum **600**, 517 (2008).
- [164] M. B. McLaurin, A. Hirai, E. Young, F. Wu und J. S. Speck, *Basal Plane Stacking-Fault Related Anisotropy in X-ray Rocking Curve Widths of m -Plane GaN*, Jpn. J. Appl. Phys. **47**, 5429 (2008).
- [165] Y. S. Cho, Q. Sun, I.-H. Lee, T.-S. Ko, C. D. Yerino, J. Han, B. H. Kong, H. K. Cho und S. Wang, *Reduction of stacking fault density in m-plane GaN grown on SiC*, Appl. Phys. Lett. **93**, 111904 (2008).
- [166] V. Ramachandran, M. Brady, A. Smith, R. Feenstra und D. Greve, *Preparation of atomically flat surfaces on silicon carbide using hydrogen etching*, J. Electron. Mater. **27**, 308 (1998).
- [167] Diese Aufnahme mittels Rasterelektronenmikroskopie wurde freundlicherweise von Frau Diana Deuse am Institut für Angewandte Physik der Technischen Universität Braunschweig angefertigt.
- [168] J. Zhu, Y. Fan, H. Zhang, G. Lu, H. Wang, D. Zhao, D. Jiang, Z. Liu, S. Zhang, G. Chen, B. Zhang und H. Yang, *Contribution of GaN template to the unexpected Ga atoms incorporated into AlInN epilayers grown under an indium-very-rich condition by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD)*, J. Cryst. Growth **348**, 25 (2012).
- [169] Die Messungen mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie wurden von Daniel Henzler (Universität Regensburg, AG Zweck) am dort befindlichen Transmissions-elektronenmikroskop durchgeführt.
- [170] Die Bestimmung des Indiumgehalts dieser Probe wurde von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.
- [171] S. Figge, T. Böttcher, S. Einfeldt und D. Hommel, *In situ and ex situ evaluation of the film coalescence for GaN growth on GaN nucleation layers*, J. Cryst. Growth **221**, 262 (2000).
- [172] S. Kim, J. Oh, J. Kang, D. Kim, J. Won, J. W. Kim und H.-K. Cho, *Two-step growth of high quality GaN using V/III ratio variation in the initial growth stage*, J. Cryst. Growth **262**, 7 (2004).
- [173] D. Zhao, D. Jiang, J. Zhu, Z. Liu, S. Zhang, H. Yang und J. Liang, *The influence of V/III ratio in the initial growth stage on the properties of GaN epilayer deposited on low temperature AlN buffer layer*, J. Cryst. Growth **303**, 414 (2007).

- [174] X. H. Wu, D. Kapolnek, E. J. Tarsa, B. Heying, S. Keller, B. P. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars und J. S. Speck, *Nucleation layer evolution in metal-organic chemical vapor deposition grown GaN*, Appl. Phys. Lett. **68**, 1371 (1996).
- [175] M. H. Xie, S. M. Seutter, W. K. Zhu, L. X. Zheng, H. Wu und S. Y. Tong, *Anisotropic Step-Flow Growth and Island Growth of GaN(0001) by Molecular Beam Epitaxy*, Phys. Rev. Lett. **82**, 2749 (1999).
- [176] M. H. Xie, S. H. Cheung, L. X. Zheng, Y. F. Ng, H. Wu, N. Ohtani und S. Y. Tong, *Step bunching of vicinal GaN(0001) surfaces during molecular beam epitaxy*, Phys. Rev. B **61**, 9983 (2000).
- [177] M. V. Ramana Murty, P. Fini, G. B. Stephenson, C. Thompson, J. A. Eastman, A. Munkholm, O. Auciello, R. Jothilingam, S. P. DenBaars und J. S. Speck, *Step bunching on the vicinal GaN(0001) surface*, Phys. Rev. B **62**, R10661 (2000).
- [178] Diese Messungen und die zugehörigen Bestimmungen der einzelnen Winkel wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers durchgeführt.
- [179] Die Messungen der Proben A-D und F wurden von Herrn Dr. Heiko Bremers an der Technischen Universität Braunschweig durchgeführt.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Menschen danken, die mich während meiner Promotion begleitet und unterstützt haben, mir mit Rat und Tat zur Seite standen und so tatkräftig zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Selbstverständlich möchte ich an erster Stelle Herrn Prof. Dr. Andreas Hangleiter für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, die immer währende Diskussionsbereitschaft trotz vollen Terminkalenders und das stete Interesse am Gelingen meiner Arbeit danken.

Herrn Prof. Dr. Ferdinand Scholz möchte ich ganz herzlich für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens und die vielen fachlichen Diskussionen im Rahmen von Projekttreffen und Tagungen danken. Ebenfalls möchte ich mich für die Bereitstellung der in dieser Arbeit viel diskutierten (11 $\bar{2}$ 2)-orientierten GaN-Templates bedanken.

Herrn Prof. Dr. Patrik Recher möchte ich von Herzen für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes danken. Ich freue mich sehr darüber, ihn für diese Aufgabe gewonnen zu haben.

Für die tägliche Unterstützung in allen Belangen rund um das Wachstum von Proben, die Wartung der Anlage, die Auswertung von Ergebnissen und die unzähligen Stunden fruchtbarer Diskussionen möchte ich mich überaus herzlich bei Herrn Dr. habil. Uwe Rossow bedanken. Ohne ihn wäre die Arbeitsgruppe nicht das, was sie ist.

Als nächstes möchte ich Herrn Dr. Heiko Bremers meinen allerherzlichsten Dank aussprechen. Von ihm habe ich alles, was ich heute über die Röntgenuntersuchung von Gruppe-III-Nitriden unterschiedlichster Orientierungen weiß, gelernt. Des Weiteren möchte ich ihm für die vielen gemachten Messungen an den sehr komplexen semi-polaren Strukturen und die unzähligen gemeinsamen Stunden im Röntgenlabor danken.

Herrn Prof. Dr. Rüdiger Goldhahn und Herrn Dr. Egidijus Sakalauskas von der Technischen Universität Ilmenau möchte ich für die Untersuchungen mittels spektroskopischer Ellipsometrie an einigen meiner gitterangepassten Proben danken.

Des Weiteren würde ich gern Herrn Prof. Dr. Josef Zweck und Herrn Daniel Henzler für die Untersuchung einiger AlInN-Schichten mittels energiedispersiver Röntgenspektroskopie und Rastertunnelelektronenmikroskopie danken.

Außerdem bedanke ich mich ganz herzlich bei allen Mitstreitern und Kollegen im Rahmen des PolarCoN-Projektes. Es hat mich sehr gefreut, ein Teil dieser Community rund um die nicht- und semipolaren Nitride zu sein und an den vielen interessanten und fruchtbaren Projekttreffen und Workshops teilnehmen zu dürfen.

Frau Diana Deuse möchte ich nicht nur herzlich für die allmorgendliche Vorbereitung der Substrate, das Brechen und Spalten der Proben und das Anfertigen der REM-Bilder danken, sondern möchte mich bei ihr darüber hinaus für die schöne Zeit am Institut bedanken.

Ebenso möchte ich mich ganz herzlich bei Frau Ingeborg Westphal für die Unterstützung in allen elektronischen Belangen und den großen Spaß auf der dritten Etage bedanken.

Frau Dagmar Schumacher möchte ich für die große Unterstützung in allen organisatorischen Belangen danken.

Den Herren Frank Werner, Holger Kroker und Richard Boettge aus der Metallwerkstatt möchte ich für die tatkräftige Unterstützung beim Bau von Exponaten für die TU-Days, aber auch von privaten Dingen, danken.

Als nächstes möchte ich der „Kaffeerunde“ mit allen ihren aktuellen und ehemaligen Mitgliedern für die tolle Zeit am Institut danken. In unsortierter Reihenfolge sind da zu nennen: Dr. Holger Jönen, Dr. Lars Hoffmann, Dr. Andreas Kraus, Dr. Torsten Langer, Dr. Heiko Bremers, Peter Clodius, Daniel Dräger, Dr. Jörg Hisek, Dr. Jayanta Kumar Mishra, Martina Thomsen, Fedor Alexej Ketzer, Christopher Hein, Philipp Horenburg, Diana Deuse, Ingeborg Westphal.

Ein ganz besonderer Dank gilt selbstverständlich meiner Familie, meiner Mutter und meinem Vater, die es mir erst ermöglicht haben, das Physikstudium zu absolvieren. Meiner Mutter möchte ich an dieser Stelle noch einmal gesondert für das Korrekturlesen meiner Arbeit auf Fehler in der Rechtschreibung und Zeichensetzung danken.

Zuletzt möchte ich mich bei meiner Frau Dr. Ricarda Korn ganz herzlich für die immer fortwährende Unterstützung, das Korrekturlesen meiner Arbeit und so manchen „Tritt in den Allerwertesten“ bedanken. Ohne sie wäre ich niemals so weit gekommen und hätte letztendlich diese Arbeit vielleicht nie vollendet.

DANKE FÜR ALLES!